

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À MONTRÉAL

IMPORTANCE DES PROPRIÉTÉS PHYSICO-CHIMIQUES DES AÉROSOLS POUR
LA FORMATION DES NUAGES GLACÉS EN ARCTIQUE

MÉMOIRE

PRÉSENTÉ

COMME EXIGENCE PARTIELLE

DE LA MAÎTRISE EN SCIENCES DE L'ATMOSPHÈRE

PAR SETIGUI ABOUBACAR KEITA

AVRIL 2015

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À MONTRÉAL
Service des bibliothèques

Avertissement

La diffusion de ce mémoire se fait dans le respect des droits de son auteur, qui a signé le formulaire *Autorisation de reproduire et de diffuser un travail de recherche de cycles supérieurs* (SDU-522 – Rév.01-2006). Cette autorisation stipule que «conformément à l'article 11 du Règlement no 8 des études de cycles supérieurs, [l'auteur] concède à l'Université du Québec à Montréal une licence non exclusive d'utilisation et de publication de la totalité ou d'une partie importante de [son] travail de recherche pour des fins pédagogiques et non commerciales. Plus précisément, [l'auteur] autorise l'Université du Québec à Montréal à reproduire, diffuser, prêter, distribuer ou vendre des copies de [son] travail de recherche à des fins non commerciales sur quelque support que ce soit, y compris l'Internet. Cette licence et cette autorisation n'entraînent pas une renonciation de [la] part [de l'auteur] à [ses] droits moraux ni à [ses] droits de propriété intellectuelle. Sauf entente contraire, [l'auteur] conserve la liberté de diffuser et de commercialiser ou non ce travail dont [il] possède un exemplaire.»

REMERCIEMENTS

Je remercie tout particulièrement mon directeur de recherche, le professeur Éric Girard pour sa grande disponibilité. Ses encouragements et ses nombreux conseils qui m'ont apporté une aide précieuse jusqu'à la rédaction finale de ce mémoire.

Je remercie également tous les professeurs, le personnel et les étudiants du groupe des sciences de l'atmosphère tout particulièrement Katja Winger, Maxime Breau et mes collègues de bureau, pour leur entière collaboration et leur appui.

Je remercie mes amis que j'ai rencontrés à Montréal et m'ont permis de décompresser tout en gardant mes priorités.

Un remerciement particulier pour mes frères et ma sœur, leur encouragement m'a beaucoup aidé.

Finalement, je suis heureux d'associer à ce travail mes parents d'avoir pu cultiver en moi le goût du savoir et de la persévérance. Votre appui et votre ouverture d'esprit m'ont permis d'aller jusqu'au bout de mes objectifs. Un merci tout particulier à ma mère pour son encouragement et son soutien inconditionnel à qui je dédie ce mémoire.

TABLE DES MATIÈRES

LISTE DES FIGURES	v
LISTE DES TABLEAUX	viii
LISTE DES ACRONYMES	ix
LISTE DES SYMBOLES	xi
RÉSUMÉ	xiii
CHAPITRE I.....	1
INTRODUCTION	1
CHAPITRE II	15
IMPORTANCE OF PHYSICO-CHEMICAL PROPERTIES OF ICE NUCLEI IN THE FORMATION OF ARCTIC ICE CLOUDS	15
2.1. Abstract	16
2.2. Introduction	17
2.3. Model description.....	20
2.4. Observations.....	23
2.5. Numerical simulation set-up	25
2.6. Results.....	27
2.6.1. Vertical Profiles of RH _i , N _i and R _i	27
2.6.2. Statistical analysis.....	31
2.6.2.1. TIC-1 clouds F12 and F13.....	32
2.6.2.1.1. Co-variability of N _i with TT and S _i	32
2.6.2.1.2. Modeled vs observed N _i and R _i	33
2.6.2.2. TIC-2 clouds F21 and F29.....	34
2.6.2.2.1. Co-variability of N _i with TT and S _i	34

2.6.2.2.2. Modeled vs observed Ni and Ri	35
2.7. Summary and conclusion	36
FIGURES	39
CHAPITRE III.....	76
Conclusion	76
APPENDICES	80
RÉFÉRENCES.....	86

LISTE DES FIGURES

Figure	Page
2.1 The large and small domains. Simulation is used to drive two inner smaller domains, one centered over Barrow and the other one over Fairbanks. These small domains have 240 x 240 grid points with a horizontal resolution of 2.5 km.	41
2.2 Comparison of the observed and simulated (NAT1, NAT2, NAT3, ORI, NAC and AC) vertical profiles of temperature (TT) for the flights F12 (a) and F13 (b). The red dash line represents the uncertainties on the measurements.	42
2.3 Comparison of the observed and simulated (NAT1, NAT2, NAT3, ORI, NAC and AC) vertical profiles of temperature (TT) for the flights F21 (a) and F29 (b). The red dash line represents the uncertainties on the measurements.	43
2.4 The observed and simulated vertical profile of the ice crystal number concentration for the F12 (a) and F13 (b) both TIC-1. The red dash line represents the uncertainties on the measurements. .	44
2.5 The observed and simulated vertical profile of the ice crystal number concentration for the F21 (a) and F29 (b) and both TIC-2B. The red dash line represents the uncertainties on the measurements.	45
2.6 The vertical profiles of the relative humidity with respect to ice (H _{ri}) simulated by GEM-LAM and observed during flight F12 (a) and F13 (b). The red dash line represents the uncertainties on the measurements.	46
2.7 The vertical profiles of the relative humidity with respect to ice (H _{ri}) simulated by GEM-LAM and observed during flight F21 (a) and F29 (b). The red dash line represents the uncertainties on the measurements.	47
2.8 shows the observed and simulated vertical profiles of the cloud ice crystal mean radius during the flights F12 (a) and F13 (b). The red dash line represents the uncertainties on the measurements.	48
2.9 The observed and simulated vertical profiles of the cloud ice crystal mean radius during the flights F21 (a) and F29 (b). The red dash line represents the uncertainties on the measurements...	49
2.10 The simulated and observed co-variabilities between N _i and TT for flights F12 and F13 for NAT1 case.	50
2.11 The simulated and observed co-variabilities between N _i and TT for flights F12 and F13 for NAT2 case.	51

2.12 The simulated and observed co-variabilities between Ni and TT for flights F12 and F13 for NAT2 case.	52
2.13 The simulated and observed co-variabilities between Ni and TT for flights F12 and F13 for ORI case.	53
2.14 The simulated and observed co-variabilities between Ni and TT for flights F12 and F13 for NAC case.	54
2.15 The observed and simulated co-variabilities between Ni and Si for the flights F12 & F13 for NAT1 case.	55
2.16 The observed and simulated co-variabilities between Ni and Si for the flights F12 & F13 for NAT2 case.	56
2.17 The observed and simulated co-variabilities between Ni and Si for the flights F12 & F13 for NAT3 case.	57
2.18 The observed and simulated co-variabilities between Ni and Si for the flights F12 & F13 for ORI case.	58
2.19 The observed and simulated co-variabilities between Ni and Si for the flights F12 & F13 for NAC case.	59
2.20 The co-variability between simulated and observed Ni for flights F12 and F13 for the NAT1 case.	60
2.21 The co-variability between simulated and observed Ni for flights F12 and F13 for the NAT1 case.	61
2.22 The co-variability between simulated and observed Ni for flights F12 and F13 for the NAT3 case.	62
2.23 The co-variability between simulated and observed Ni for flights F12 and F13 for the NAC case.	63
2.24 The co-variability between simulated and observed Ni for flights F12 and F13 for the ORI case.	64
2.25 Covariance between anomalies of ice crystal concentration and saturation over ice in a non-acide Case.	65
2.26 The co-variability between simulated and observed Ri during flights F12 (a) and F13 (b) for the NAT1 and NAT2 cases respectively.	66
2.27 The co-variability between simulated and observed Ri during flights F12 (a) and F13 (b) for the NAT3 and ORI cases respectively.	67

2.28 The co-variability between simulated and observed Ri during flights F12 and F13 for the NAC case.	68
2.29 The observed and simulated co-variability between Ni and TT for flights F21 & F29 for the AC case.	69
2.30 The observed and simulated co-variability between Ni and TT for flights F21 & F29 for the ORI case.	70
2.31 The observed and simulated co-variability between Ni and Si for flights F21 & F29 for the AC case.	71
2.32 The observed and simulated co-variability between Ni and Si for flights F21 & F29 for the ORI case.	72
2.33 The shape of the normalized curve for the exponential part of the nucleation rate equation according to CNT.	73
2.34 The co-variability between simulated and observed Ni during flights F21 (a) and F29 (b) for the AC and ORI cases respectively.	74
2.35 The co-variability of simulated and observed Ri during flights F21 (a) and F29 (b) for the AC and ORI case respectively	75

LISTE DES TABLEAUX

Tableau	Page
2.1 The information ISDAC's flights. Four different clouds were observed during these flights, F12, F13, F21 and F29.	40
2.2 The six ice nucleation parameterization used for our simulations. Note that ORI does not consider the IN to be coated or uncoated, hence the lack of a contact angle. Ice nucleation is derived from a empirical relationship (Meyers et al,1992).	40
2.3 The co-variability between simulated and observed Ni and Ri. Pristine Air Masses cases.....	40
2.4 The co-variability between simulated and observed Ni and Ri. Highly Acidic Air Masses cases.	41

LISTE DES ACRONYMES

3D	Three dimensions
ARCTAS	Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites
AMIP II	The Atmosphere Model Intercomparison Project
CNT	Classical Nucleation Theory
CRCM	Canadian Regional Climate Model
CRF	Cloud Radiative Forcing
ECMWF	European Center of Medium-Range Weather Forecast
IN	Ice-forming nuclei
IR	Infrared
ISBA	Interactions Soil-Biosphere-Atmosphere
IWP	Ice Water Path
LWP	Liquid Water Path
MSLP	Mean Sea Level Pressure
Ni	Ice crystal number concentration
ref	reference
RHi	Relative Humidity with respect to ice
Ri	Mean ice crystal radius
RMS	Root-mean squared error
S_{ice}	Saturation ratio with respect to ice
SIC	Sea Ice Cover
SST	Sea Surface Temperature
t	Observation time

TIC	Types of Ice Clouds
TOA	Top of the Atmosphere

LISTE DES SYMBOLES

θ	Contact angle
AC	Bertram parameterization of acid ($\theta = 26^\circ$) with contact
$^\circ \text{C}$	Degree Celsius
CFC ₁₁₋₁₄	Freon 11-14
CH ₄	Methane
CO ₂	Carbon dioxide
Δt	Time step
GEM-LAM	Limited Area version of the Global Environmental Multi-scale model
GEMCLIM	GEM-LAM in climate mode
NAC	Bertram parameterization of acid ($\theta = 12^\circ$) without contact
N _{deposition}	Contact ice crystal concentration
N _{total}	Maximum deposition ice crystal concentration
NAT1	Niemand parameterization for
NAT2	Wheeler and Bertram parameterization for kaolinite
NAT3	Wheeler and Bertram parameterization for illite
$\frac{N_f}{N_0}$	Frozen fraction of ice nucleus
n_s	Surface density of active sites
O ₃	Ozone
RE	Mean relative error
SO ₂	Sulfure dioxide
T	Environment temperature
TIC	Types of Ice Clouds

TT

Vertical profiles of temperature

RÉSUMÉ

Les nuages glacés jouent un rôle important sur le climat arctique. Les interactions entre les aérosols, les nuages et le rayonnement sont mal comprises. Par conséquent, il est essentiel de bien caractériser les propriétés des nuages et en particulier leur processus de formation. De nombreuses observations in situ et satellitaires révèlent l'existence de deux types de nuages de glace (TIC) dans l'Arctique au cours de la nuit polaire et au début du printemps. Les TIC-1 sont constitués de petits cristaux de glace de moins de 30 μm de diamètre en suspension dans l'air et invisible au radar. Le deuxième type, les TIC-2, sont détectés par le radar et se caractérisent par une faible concentration de gros cristaux de glace ($> 30 \mu\text{m}$) de taille suffisante pour précipiter. Afin d'expliquer ces différences de microstructure, nous faisons l'hypothèse suivante : la formation du TIC-2 est liée à l'acidification des aérosols, qui inhibe et affecte les propriétés de nucléation de la glace de ces noyaux glacogènes (*IN*). En conséquence, la concentration de *IN* est réduite dans ces zones, ce qui entraîne une plus faible concentration de cristaux de glace. La vapeur d'eau disponible pour déposition étant la même, ces cristaux atteignent une taille plus importante. Les modèles n'arrivent pas actuellement à dissocier ces différents types de nuages. Ce problème est dû aux paramétrages implémentés pour la nucléation des cristaux. Au cours des 10 dernières années, plusieurs paramétrages de nucléation homogène et hétérogène de la glace ont été élaborés pour refléter les différentes propriétés physico-chimiques des aérosols. Les paramétrages sont développés selon deux approches principales : stochastiques (selon laquelle la nucléation est un processus probabiliste, qui dépend du temps) et singulière (selon laquelle la nucléation se produit dans des conditions fixes de température et d'humidité et est indépendante du temps). Il y a présentement un débat dans la communauté scientifique pour déterminer l'approche la plus réaliste. Cette recherche vise à mieux comprendre le processus de formation des TIC en utilisant les nouveaux paramétrages de nucléation des cristaux. Pour ce faire, nous avons implémenté certains de ces paramétrages (des 2 approches) dans la version à aire limitée du Modèle Global Environnemental Multiéchelle (GEM-LAM) pour simuler par la suite les nuages glacés observés au cours de la campagne de mesure (ISDAC) en Alaska. Nous avons utilisé les deux approches mais une attention particulière est portée sur les nouveaux paramétrages de l'approche singulière. Les résultats de simulation des TIC-2 observées le 15 Avril et le 25 (cas polluées ou acides) et TIC-1 observés le 5 Avril (cas non polluées) seront présentés. Durant notre recherche nous avons remarqué que l'approche stochastique avec le changement d'angle de contact arrivait à bien simuler les deux différents types de nuage. L'approche singulière par contre arrive à simuler que de façon partielle les TIC-1 en sous estimant le bas des nuages. Elle surestime systématiquement les concentrations de cristaux dans les TIC-2. Elle fait une sous-estimation de la concentration en cristaux de glace à différents intervalles de la température (*TT*) en particulier à des valeurs $> -25 \text{ }^{\circ}\text{C}$. Cependant, une erreur systématique obtenue dans cette étude par tous les schémas est la sous-estimation de la saturation par rapport à la glace (*Si*) près du sommet des nuages étudiés. La limitation du paramétrage original lui permet de bien simuler la faible concentration de gros cristaux des cas acide.

Mots clés : microphysique des nuages, modélisation numérique, climat arctique, GEM-LAM

CHAPITRE I

INTRODUCTION

Selon le Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Évolution du Climat (GIEC) (2007) et Hassol (2005), la région de l'Arctique est la plus sensible aux changements climatiques sur la Terre. Au cours de la dernière décennie, le réchauffement a augmenté d'un facteur 3 dans cette région par rapport au réchauffement moyen global (Hansen et al. 2010). Les observations satellitaires montrent une tendance au réchauffement depuis les années 70, excepté au-dessus de certaines zones où la température tend à se refroidir, comme au-dessus de la Mer de Béring et en Sibérie durant les saisons hivernales (Serreze et Francis, 2006). Tous les modèles climatiques s'accordent à prévoir une continuation de cette forte tendance au réchauffement au niveau du pôle Nord, avec les plus grands changements à venir pendant les saisons froides (Chapman et Walsh, 2007). L'amplitude et l'évolution future du réchauffement de l'Arctique sont très incertaines. L'environnement arctique possède un climat particulier qui est hautement sensible aux perturbations des éléments qui le composent tels que la couverture de glace de mer et les nuages. L'une des principales caractéristiques de l'environnement radiatif en arctique est l'absence de radiations solaires (ondes courtes) pour une portion importante de l'année. Les nuages arctiques sont l'une des composantes les plus importantes de ce climat puisque Shupe et al. (2011a) ont montré que entre l'hiver et l'été la fraction nuageuse mesurée au sol augmente de 58 à 83% au-dessus de l'étendue de glace et près de la côte nord à six stations d'observatoires de l'arctique (Barrow, Atkasuk, SABA, Eureka, Ny'Alesund, Summit). L'effet sur le bilan radiatif annuel de ces nuages de l'Arctique est un réchauffement pour la plupart de l'année, sauf pendant une courte période au cours de l'été [Intrieri et al. 2002].

Shupe (2011b) remarque que les nuages composés uniquement de glace sont plus fréquents que les nuages en phase mixte avec une longévité similaire, basé sur des statistiques de moyennes-annuelles effectuées au-dessus de trois sites d'observations (Barrow, Eureka, SHEBA). Les faibles températures et les valeurs élevées d'humidité relative durant les saisons froides font de l'Arctique un environnement très propice à la formation des nuages de glace (Wyser et Jones, 2005), aussi bien dans la haute que dans la basse troposphère (Devasthale et al., 2010; Shupe, 2011b). De récentes études montrent

que les nuages de glace arctiques optiquement minces (Intrieri et Shupe, 2004 ; Lampert et al., 2009) ont un effet limité sur le bilan radiatif en surface. Cependant leur existence pourrait être importante dans cette région (1) en influençant l'évolution des nuages en phase-mixte de bas niveau (Morrison et al., 2005; 2012), et (2) en hiver, lorsque le réchauffement résultant du forçage radiatif tellurique des nuages n'est pas compensé par le refroidissement résultant de l'albédo des nuages (solaire)" (Girard et Blanchet, 2001; Shupe et Intrieri, 2004). Les nuages de glace optiquement minces font référence à des cristaux de glace qui se forment fréquemment dans la troposphère polaire, dans des conditions de ciel « clair », c'est à dire sans l'opacité associée aux nuages plus communs à nos latitudes. Le forçage radiatif du nuage en surface dépend fortement des quantités intégrées verticalement de l'eau condensée (sous forme liquide ou solide), de la taille et de la forme des cristaux, de la température et de la hauteur du nuage, ainsi que de l'angle zénithal solaire (AZS), et de l'albédo de surface (Shupe et Intrieri, 2004). La compréhension des processus microphysiques et radiatifs qui influencent l'évolution du nuage est donc une étape indispensable à la caractérisation des interactions nuage rayonnement.

La formation de la phase liquide ou solide dans un nuage est le résultat de la nucléation. La nucléation est un processus de changement de phase au cours duquel la matière acquiert un plus grand degré d'organisation moléculaire. L'apparition de gouttelettes d'eau ou de cristaux de glace suite à un refroidissement ne s'effectue pas de manière spontanée. Le passage à un état moléculaire plus organisé nécessite un apport d'énergie. Il existe différents types de nucléation : la nucléation homogène (une seule phase) et la nucléation hétérogène (différentes phases).

La nucléation homogène, comme la formation de gouttelettes d'eau à partir de vapeur d'eau, requiert une humidité relative dans le nuage très élevée qui ne se produit pas dans des conditions atmosphériques normales. La nucléation homogène des gouttelettes d'eau est donc impossible dans l'atmosphère. Par contre le gel homogène des cristaux de glace à partir de gouttelettes d'eau est théoriquement possible pour des températures inférieures à -37°C (Pruppacher et Klett, 1997). Dans un nuage il n'est pas rare de trouver de l'eau liquide surfondue en petite quantité. Cette eau dont la température est inférieure à 0°C , se trouve alors dans un état métastable et la moindre perturbation (contact par exemple) provoque sa solidification. L'apport d'un agent externe ayant pour effet de réduire l'énergie à fournir à la nucléation est donc nécessaire; les aérosols. Ce support matériel est appelé noyau de condensation (CCN en anglais pour Cloud Condensation

Nuclei) pour les gouttelettes d'eau et noyau glacogène (*IN* en anglais pour Ice Nuclei) pour les cristaux de glace. Les *IN* contiennent à leur surface des sites actifs (surface non régulière et/ou impuretés de composition chimique pouvant être différente) dont la structure cristalline est compatible avec celle de la glace. En général, la capacité d'un aérosol à initier le gel croît avec sa taille (Welti et al., 2009).

Il existe plusieurs modes de formation d'un cristal de glace, dont les plus connus sont le gel homogène, la nucléation par déposition, le gel par immersion, le gel par condensation et le gel par contact (Pruppacher et Klett, 1997). La nucléation par déposition définit la formation d'un embryon de glace sur la surface d'un *IN* solide ou partiellement immergé dans une solution aqueuse à partir d'apport de vapeur d'eau. Le gel par immersion définit la formation de glace sur la surface d'un *IN* immergé dans une solution aqueuse (aérosol non activé) ou dans une gouttelette d'eau surfondue. Le gel par condensation définit la formation de glace sur la surface d'un *IN* après avoir permis la condensation (i.e. lorsque la gouttelette d'eau s'active). Le gel par contact se produit lorsqu'une gouttelette d'eau surfondue entre en contact avec un *IN* puis gèle instantanément. La nucléation par déposition et par immersion d'un aérosol non activé se produit lorsque l'environnement est à la fois sous-saturé par rapport à l'eau liquide et sursaturé par rapport à la glace; alors que les trois autres modes nécessitent une humidité relative plus élevée, c'est-à-dire un environnement sursaturé par rapport à l'eau liquide. L'importance relative de chacun de ces processus de nucléation des cristaux de glace au sein des nuages glacés est encore très incertaine.

De nombreuses observations in situ et satellitaires (CloudSat et CALIPSO) révèlent l'existence de deux types de nuages de glace (TIC pour « type of ice cloud) dans l'Arctique au cours de la nuit polaire et au début du printemps. Les TIC-1 sont constitués de très petits cristaux de glace en suspension dans l'air et invisible au radar alors que les TIC-2 sont détectés par le radar et se caractérisent par une faible concentration de gros cristaux de glace précipitent (Grenier et al., 2009; Jouan et al., 2012). On suppose que la formation du TIC-2 est liée à l'acidification des aérosols, qui inhibe et affecte les propriétés de nucléation de la glace de ces noyaux glacogènes (*IN*). En conséquence, la concentration de *IN* est réduite dans ces zones, ce qui entraîne une moindre concentration de plus gros cristaux de glace. Pour vérifier cette hypothèse, une étude récente a été faite sur les propriétés microphysiques des TIC-1 et TIC-2, en analysant des mesures aéroportées et satellitaires de cas spécifiques observés durant la campagne de mesures ISDAC (Alaska, Avril 2008) (Jouan et al., 2012). La mission Indirect and Semi-Direct Aerosols Campaign

(ISDAC) (McFarquhar et al., 2011) a été menée par le département DOE-ARM (Département Of Energy-ARM) dont le principal objectif fut de collecter une série d'observations essentielles à l'avancée de notre compréhension sur les propriétés des nuages et des aérosols. Cette expérience fut conduite en avril 2008 dans le nord de l'Alaska (NSA, North Slope of Alaska). L'avion "Convair-580" du conseil National de Recherche Canadien (NRC) a servi de plate-forme pour des mesures in situ dans les nuages entre les sites de Barrow et de Fairbanks (Figure 2.1). Celui-ci était équipé de près de 40 instruments utilisés pour obtenir des mesures des propriétés des aérosols, de l'état atmosphérique, des propriétés microphysiques des nuages, des précipitations et du rayonnement. Jouan et al. (2012 ; 2013) a mené des études de cas afin d'analyser le transport des aérosols et les propriétés des nuages de glace en Arctique. Pour la première fois, les microstructures des TIC-1 et TIC-2 en Arctique sont comparées en utilisant les observations in-situ des nuages. Les résultats montrent que les différences entre eux sont confinées dans la partie supérieure du nuage, où se produit la nucléation des cristaux. Les TIC-2 sont caractérisés par une plus faible concentration ($< 10 \text{ L}^{-1}$) de plus gros cristaux de glace ($> 110 \mu\text{m}$), une plus grande sursaturation par rapport à la glace ($> 15 \%$) et une plus faible concentration de IN (< 2 ordres de grandeur), comparés aux TIC-1. La croissance des cristaux de glace dans les TIC-2 semble « explosive » alors qu'elle semble plus « progressive » au sommet des TIC-1. On suppose que ces différences sont liées à la concentration en nombre et à la composition chimique des aérosols. Une deuxième étude de Jouan sur l'origine des masses d'air formant deux cas spécifiques de TICs ISDAC: TIC-1 (1 Avril 2008) et TIC-2 (15 Avril 2008), en utilisant des outils de rétro-trajectoire et des données satellitaires ont montré que les conditions synoptiques favorisent le transport de masses d'air en provenance de trois zones d'émissions potentielles de SO_2 jusqu'en Alaska: l'est de la Chine et de la Sibérie, où des émissions anthropiques et de combustion de biomasse sont respectivement produites et la région volcanique du Kamtchatka et des Iles Aléoutiennes. Les conditions météorologiques permettent l'accumulation de polluants provenant de l'est de la Chine/Sibérie au-dessus de l'Alaska, avec probablement une forte contribution d'aérosols volcaniques acides au cours de la période du TIC-2. Les observations indiquent que les concentrations de SO_2 dans les masses d'air formant le TIC-2 sont plus grandes que dans les masses d'air formant le TIC-1. Des mesures aéroportées confirment une acidité élevée à proximité du TIC-2 où l'humidité est faible (Jouan et al 2012). Ces résultats appuient l'hypothèse que le revêtement acide sur les IN pourrait être à l'origine de la formation du TIC-2.

Au cours des 10 dernières années, plusieurs paramétrages de nucléation homogène et hétérogène de la glace ont été élaborés pour refléter les différentes propriétés physico-chimiques des aérosols (Hoose et Mohler, 2010). Ces paramétrages sont dérivés d'études de laboratoire sur des aérosols de compositions chimiques différentes. Les paramétrages sont également développés selon deux approches principales: stochastiques (selon laquelle la nucléation est un processus probabiliste, qui dépend du temps) et singulière (selon laquelle la nucléation se produit dans des conditions fixes de température et d'humidité et est indépendante du temps). Les paramétrages des nuages que l'on retrouve dans les modèles climatiques ont été, pour la plupart, développés pour des environnements ayant des caractéristiques thermodynamiques grandement différentes de celles que l'on retrouve en arctique. En général, ils simulent mal la nébulosité arctique (Wyser et al. 2008). D'autre part, il est important de simuler adéquatement les nuages arctiques afin de pouvoir reproduire correctement de nombreux procédés tels que les transferts radiatifs, les mécanismes de rétroaction de la vapeur d'eau, la précipitation ainsi que les transferts de chaleurs via la chaleurs latente.

Quelques études de modélisation ont permis d'évaluer l'effet de l'acidification des aérosols et de la formation des TIC-2 sur le climat arctique durant l'hiver (Girard et al., 2001; 2005; Girard et Stefanof, 2007). La plus récente étude publiée à ce sujet est celle de Girard et al. (2012). Les effets des noyaux glaciogènes acidifiés (effet SIFI) sur les propriétés nuageuses et sur le bilan radiatif en surface en Arctique pour les mois de janvier et février 2007 ont été évalués à partir de simulations effectuées à l'aide du modèle GEM-LAM (Limited-Area version of the Global Multiscale Environmental Model) (Côté et al., 1998) combinées avec les résultats d'expériences menées en laboratoire de Eastwood et al. (2008; 2009). Les résultats montrent que les particules de poussière acidifiées ont un impact non négligeable sur la microstructure des nuages, la déshydratation de l'atmosphère, le bilan radiatif et la température au-dessus de l'Arctique central. L'acidification des *IN* entraîne la formation de nuages de glace de moyenne et haute altitude ayant une faible épaisseur optique et des nuages en phase-mixte de bas niveaux plus fréquents et persistants. L'augmentation du LWP n'affecte pas l'émissivité des nuages en phase-mixte puisqu'à partir d'un certain seuil, ils émettent comme un corps noir ($> 10\text{--}15 \text{ g.m}^{-2}$). Le forçage radiatif des nuages dépendra uniquement du IWP contenu dans les nuages de moyenne et hautes altitudes. Ces changements dans la microstructure du nuage affectent ainsi le bilan radiatif au sommet de l'atmosphère avec une diminution du forçage radiatif des nuages dans l'infrarouge de 0 à -6 W.m^{-2} au-dessus de l'Arctique central. Ceci

conduit à un refroidissement de l'atmosphère et ainsi favorise la formation de nuages avec une diminution de l'effet de serre de la vapeur d'eau et une augmentation des précipitations. Les résultats montrent que ce refroidissement de l'Arctique est assez grand pour renforcer la circulation troposphérique à grande échelle associée au front polaire à travers l'intensification de la zone barocline. Bref, les modèles climatiques et de prévision ont de la difficulté à simuler la fréquence et la persistance des nuages arctiques observés ce qui entraîne des biais dans les flux radiatifs à la surface. Ces difficultés sont principalement attribuables aux incertitudes dans les concentrations simulées de gouttelettes de nuage et de cristaux de glace (Curry et al. 2000 ; Morrison et al. 2003 ; 2005).

Le manque de connaissances des procédés physiques se produisant en Arctique est la principale source de difficulté lors de la conception de paramétrages utilisés pour la simulation des nuages arctiques. Le peu d'observations valides pour cette région du globe complique également les études réalisées en Arctique, sans oublier la difficulté d'analyser ces nuages à l'aide des observations satellitaires puisqu'en Arctique les nuages sont généralement optiquement minces et de bas niveau. Il y a ainsi peu de contraste thermique entre les nuages et la surface glacée. Les difficultés à simuler les nuages glacés arctiques sont dues à de nombreux facteurs dont la structure verticale complexe de la couche limite arctique, la présence d'ouvertures dans la glace de mer, la persistance de ce type de nuages et leur susceptibilité à être modifié par les aérosols.

Les aérosols ont un impact important sur le climat via les nuages et la radiation. Les aérosols influencent la taille des gouttelettes de nuage qui, elle, détermine la profondeur optique du nuage et son émissivité, c'est le premier effet indirect des aérosols. Cet effet est également communément appelé l'effet Twomey (Twomey, 1974). Une augmentation de la concentration d'aérosols accroît la concentration de gouttelettes et diminue le rayon effectif de celle-ci ce qui réduit la précipitation et allonge la durée de vie du nuage, c'est le deuxième effet indirect des aérosols. D'autres effets indirects, tel que la rétroaction déshydratation-effet de serre (Blanchet et Girard, 1994) ont possiblement un impact important sur le climat arctique via l'influence des aérosols sur la nucléation des cristaux de glace. Les effets indirects des aérosols sont importants au-dessus de l'océan Arctique ou de petits changements dans le flux radiatifs à la surface peuvent entraîner des perturbations significatives de l'épaisseur et de la concentration de glace de mer. C'est cette relation étroite qui existe entre aérosols et la microphysique des nuages et des processus de nucléation. La plupart des schémas microphysiques présentement utilisés dans les modèles du climat ne sont pas assez complexes pour les études détaillées de la microphysique des

nuages arctiques et de leur interaction avec les aérosols. Dans les modèles climatiques, un traitement plus réaliste de la microphysique de la glace, en particulier de la concentration des cristaux et de la neige est nécessaire pour améliorer les résultats de la simulation des nuages arctiques (Klein et al. 2009).

Les difficultés rencontrées lors de simulations précédentes des nuages arctiques et le besoin de développer des schémas microphysiques plus performants capable de reproduire les interactions complexes entre les nuages et les aérosols sont à l'origine de l'élaboration de ce projet de recherche. L'objectif de ce projet de recherche est de mieux comprendre le processus de formation des TIC en utilisant les nouveaux paramétrages de nucléation de la glace. Le Chapitre I fait une rétrospective et une mise en contexte du sujet. Le Chapitre II, qui est le corps du mémoire, est un article en préparation pour publication dans un journal scientifique. Cet article intitulé « Importance of physico-chemical properties of aerosols in the formation of Arctic ice clouds » vise à mieux comprendre le processus de formation des TIC en utilisant les nouveaux paramétrages de nucléation de la glace. Pour ce faire, nous avons implémenté certains de ces paramétrages (des 2 approches) dans GEM-LAM pour simuler par la suite les nuages glacés observés au cours de la campagne de mesure (ISDAC) en Alaska. Une attention particulière a été portée sur les nouveaux paramétrages de l'approche singulière. Les résultats de simulation des TIC-2 observées le 15 et le 25 avril 2008 (cas polluées ou acides) et TIC-1 observés le 5 avril 2008 (cas non polluées) y sont présentés ainsi que différentes études statistiques. Enfin, le Chapitre III se veut être une conclusion générale associée à certaines perspectives.

Selon le Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Évolution du Climat (GIEC) (2007) et Hassol (2005), la région de l'Arctique est la plus sensible aux changements climatiques sur la Terre. Au cours de la dernière décennie, le réchauffement a augmenté d'un facteur 3 dans cette région par rapport au réchauffement moyen global (Hansen et al. 2010). Les observations satellitaires montrent une tendance au réchauffement depuis les années 70, excepté au-dessus de certaines zones où la température tend à se refroidir, comme au-dessus de la Mer de Béring et en Sibérie durant les saisons hivernales (Serreze et Francis, 2006). Tous les modèles climatiques s'accordent à prévoir une continuation de cette forte tendance au réchauffement au niveau du pôle Nord, avec les plus grands changements à venir pendant les saisons froides (Chapman et Walsh, 2007). L'amplitude et l'évolution future du réchauffement de l'Arctique sont très incertaines. L'environnement arctique possède un climat particulier qui est hautement sensible aux perturbations des éléments qui le composent tels que la couverture de glace de mer et les nuages. L'une des

principales caractéristiques de l'environnement radiatif en arctique est l'absence de radiations solaires (ondes courtes) pour une portion importante de l'année. Les nuages arctiques sont l'une des composantes les plus importantes de ce climat puisque Shupe et al. (2011a) ont montré que entre l'hiver et l'été la fraction nuageuse mesurée au sol augmente de 58 à 83% au-dessus de l'étendue de glace et près de la cote nord à six stations d'observatoires de l'arctique (Barrow, Atkasuk, SABA, Eureka, Ny'Alesund, Summit). L'effet sur le bilan radiatif annuel de ses nuages de l'Arctique est un réchauffement pour la plupart de l'année, sauf pendant une courte période au cours de l'été [Intrieri et al. 2002].

Shupe (2011b) remarque que les nuages composés uniquement de glace sont plus fréquents que les nuages en phase mixte avec une longévité similaire, basé sur des statistiques de moyennes-annuelles effectuées au dessus de trois sites d'observations (Barrow, Eureka, SHEBA). Les faibles températures et les valeurs relativement élevées d'humidité spécifique durant les saisons froides font de l'Arctique un environnement très propice à la formation des nuages de glace (Wyser et Jones, 2005), aussi bien dans la haute que dans la basse troposphère (Devasthale et al., 2010; Shupe, 2011b). De récentes études montrent que les nuages de glace arctiques optiquement minces (Intrieri et Shupe, 2004 ; Lampert et al., 2009) ont un effet négligeable sur le bilan radiatif en surface. Cependant leur existence pourrait être importante dans cette région (1) en influençant l'évolution des nuages en phase-mixte de bas niveau (Morrison et al., 2005; 2012), et (2) en hiver, lorsque le réchauffement résultant du forçage radiatif tellurique des nuages n'est pas compensé par le refroidissement résultant de l'albedo des nuages (solaire)" (Girard et Blanchet, 2001; Shupe et Intrieri, 2004). Les nuages de glace optiquement minces font référence à des cristaux de glace qui se forment fréquemment dans la troposphère polaire, dans des conditions de ciel « clair », c'est à dire sans l'opacité associée aux nuages plus communs à nos latitudes. Le forçage radiatif du nuage en surface dépend fortement des quantités intégrées verticalement (phase, contenu en eau, épaisseur optique), de la taille et de la forme des cristaux, de la température et de la hauteur du nuage, ainsi que de l'angle zénithal solaire (AZS), et de l'albédo de surface (Shupe et Intrieri, 2004). La compréhension des processus microphysiques et radiatifs qui influencent l'évolution du nuage est donc une étape indispensable à la caractérisation des interactions nuage rayonnement.

La formation de la phase liquide ou solide dans un nuage est le résultat de la nucléation. La nucléation est un processus de changement de phase au cours duquel la

matière acquiert un plus grand degré d'organisation moléculaire. L'apparition de gouttelettes d'eau ou de cristaux de glace suite à un refroidissement ne s'effectue pas de manière spontanée. Le passage à un état moléculaire plus organisé nécessite un apport d'énergie. Il existe différents types de nucléation : la nucléation homogène (une seule phase) et la nucléation hétérogène (différentes phases).

La nucléation homogène, comme la formation de gouttelettes d'eau à partir de vapeur d'eau, requiert une humidité relative dans le nuage très élevée qui ne se produit pas dans des conditions atmosphériques normales. La nucléation homogène des gouttelettes d'eau est donc impossible dans l'atmosphère. Par contre le gel homogène des cristaux de glace à partir de gouttelettes d'eau est théoriquement possible pour des températures inférieures à -37°C (Pruppacher et Klett, 1997). Dans un nuage il n'est pas rare de trouver de l'eau liquide surfondue en petite quantité. Cette eau dont la température est inférieure à 0°C , se trouve alors dans un état métastable et la moindre perturbation (contact par exemple) provoque sa solidification. L'apport d'un agent externe ayant pour effet de réduire l'énergie à fournir à la nucléation est donc nécessaire; les aérosols. Ce support matériel est appelé noyau de condensation (CCN en anglais pour Cloud Condensation Nuclei) pour les gouttelettes d'eau et noyau glacogène (*IN* en anglais pour Ice Nuclei) pour les cristaux de glace. Les *IN* contiennent à leur surface des sites actifs (surface non régulière et/ou impuretés de composition chimique différente) dont la structure cristalline est compatible avec celle de la glace. En général, la capacité d'un aérosol à initier le gel croît avec sa taille (Welti et al., 2009).

Il existe plusieurs modes de formation d'un cristal de glace, dont les plus connus sont le gel homogène (cité précédemment), la nucléation par déposition, le gel par immersion, le gel par condensation et le gel par contact (Pruppacher et Klett, 1997). La nucléation par déposition définit la formation d'un embryon de glace sur la surface d'un *IN* solide ou partiellement immergé dans une solution aqueuse à partir d'apport de vapeur d'eau. Le gel par immersion définit la formation de glace sur la surface d'un *IN* immergé dans une solution aqueuse ou dans une gouttelette d'eau surfondue. Le gel par condensation définit la formation de glace sur la surface d'un *IN* après avoir permis la condensation (i.e. lorsque la gouttelette d'eau s'active). Le gel par contact se produit lorsqu'une gouttelette d'eau surfondue entre en contact avec un *IN* puis gèle instantanément. La nucléation par déposition se produit lorsque l'environnement est à la fois sous-saturé par rapport à l'eau liquide et sursaturé par rapport à la glace; alors que les trois autres modes nécessitent une

humidité relative plus élevée, c'est-à-dire un environnement sursaturé par rapport à l'eau liquide. L'importance relative de chacun de ces processus de nucléation des cristaux de glace au sein des nuages glacés est encore très incertaine.

De nombreuses observations in situ et satellitaires (CloudSat et CALIPSO) révèlent l'existence de deux types de nuages de glace (TIC pour « type of ice cloud) dans l'Arctique au cours de la nuit polaire et au début du printemps. Les TIC-1 sont constitués de très petits cristaux de glace en suspension dans l'air et invisible au radar alors que les TIC-2 sont détectés par le radar et se caractérisent par une faible concentration de gros cristaux de glace précipitent (Grenier et al., 2009; Jouan et al., 2012). On suppose que la formation du TIC-2 est liée à l'acidification des aérosols, qui inhibent et affecte les propriétés de nucléation de la glace de ces noyaux glaciogènes (*IN*). En conséquence, la concentration de *IN* est réduite dans ces zones, ce qui entraîne une moindre concentration de plus grands cristaux de glace. Pour vérifier cette hypothèse, une étude a été faite sur les propriétés microphysiques des TIC-1 et TIC-2, en analysant des mesures aéroportées et satellitaires de cas spécifiques observés durant la campagne de mesures ISDAC (Alaska, Avril 2008) (Jouan et al., 2012). La mission Indirect and Semi-Direct Aerosols Campaign (ISDAC) (McFarquhar et al., 2011) a été menée par le département DOE-ARM (Département Of Energy-ARM) dont le principal objectif fut de collecter une série d'observations essentielles à l'avancée de notre compréhension sur les propriétés des nuages et des aérosols. Cette expérience fut conduite en avril 2008 dans le nord de l'Alaska (NSA, North Slope of Alaska). L'avion "Convair-580" du conseil National de Recherche Canadien (NRC) a servi de plate-forme pour des mesures in situ dans les nuages entre les sites de Barrow et de Fairbanks (Figure 1). Celui-ci était équipé de près de 40 instruments utilisés pour obtenir des mesures des propriétés des aérosols, de l'état atmosphérique, des propriétés microphysiques des nuages, des précipitations et du rayonnement. Jouan et al. (2012 ; 2013) a mené des études de cas afin d'analyser le transport des aérosols et les propriétés des nuages de glace en Arctique. Pour la première fois, les microstructures des TIC-1/2A et TIC-2B en Arctique sont comparées en utilisant les observations in-situ des nuages. Les résultats montrent que les différences entre eux sont confinées dans la partie supérieure du nuage, où se produit la nucléation de la glace. Les TIC-2B sont caractérisés par une plus faible concentration ($< 10 \text{ L}^{-1}$) de plus gros cristaux de glace ($> 110 \mu\text{m}$), une plus grande sursaturation par rapport à la glace ($> 15 \%$) et une plus faible concentration de *IN* (< 2 ordres de grandeur), comparés aux TIC-1. La croissance des cristaux de glace dans

les TIC-2B semble « explosive » alors qu'elle semble plus « progressive » au sommet des TIC-1. On suppose que ces différences sont liées à la concentration en nombre et à la composition chimique des aérosols. Une deuxième étude de Jouan sur l'origine des masses d'air formant deux cas spécifiques de TICs ISDAC: TIC-1 (1 Avril 2008) et TIC-2 (15 Avril 2008), en utilisant des outils de rétro-trajectoire et des données satellitaires ont montré que les conditions synoptiques favorisent le transport de masses d'air en provenance de trois zones d'émissions potentielles de SO_2 jusqu'en Alaska: l'est de la Chine et de la Sibérie, où des émissions anthropiques et de combustion de biomasse sont respectivement produites et la région volcanique du Kamtchatka et des Iles Aléoutiennes. Les conditions météorologiques permettent l'accumulation de polluants provenant de l'est de la Chine/Sibérie au-dessus de l'Alaska, avec probablement une forte contribution d'aérosols volcaniques acides au cours de la période du TIC-2. Les observations indiquent que les concentrations de SO_2 dans les masses d'air formant le TIC-2 sont plus grandes que dans les masses d'air formant le TIC-1. Des mesures aéroportées confirment une acidité élevée à proximité du TIC-2 où l'humidité est faible (Jouan et al 2012). Ces résultats appuient l'hypothèse que le revêtement acide sur les *IN* pourrait être à l'origine de la formation du TIC-2.

Au cours des 10 dernières années, plusieurs paramétrages de nucléation homogène et hétérogène de la glace ont été élaborés pour refléter les différentes propriétés physico-chimiques des aérosols (Hoose et Mohler, 2010). Ces paramétrages sont dérivés d'études de laboratoire sur des aérosols de compositions chimiques différentes. Les paramétrages sont également développés selon deux approches principales: stochastiques (selon laquelle la nucléation est un processus probabiliste, qui dépend du temps) et singulière (selon laquelle la nucléation se produit dans des conditions fixes de température et d'humidité et est indépendante du temps). Les paramétrages des nuages que l'on retrouve dans les modèles climatiques ont été, pour la plupart, développés pour des environnements ayant des caractéristiques thermodynamiques grandement différentes de celles que l'on retrouve en arctique. En général, ils simulent mal la nébulosité arctique (Wyser et al. 2008). D'autre part, il est important de simuler adéquatement les nuages arctiques afin de pouvoir reproduire correctement de nombreux procédés tels que les transferts radiatifs, les mécanismes de rétroaction de la vapeur d'eau, la précipitation ainsi que les transferts de chaleurs via la chaleurs latente. Des simulations de nuages en phase mixte observés pendant la campagne de mesures M-PACE (automne) ont montré que les modèles ont plus

de difficulté à reproduire la microphysique de la glace que celle de l'eau liquide. Le modèle a prédit moins de glace que ce qui était observé ce qui reflète la présence d'incertitudes dans les mécanismes d'initiation de la glace (Morrison et al. 2008). Quelques études de modélisation ont permis d'évaluer l'effet RDES « Rétroaction - Déshydratation - Effet de Serre », dont l'effet d'inhibition de gel induit par les sulfates (SIFI en anglais pour Sulphate-Induced Freezing Inhibition) constitue le déclencheur, sur le climat Arctique (Girard et al., 2001; 2005; Girard et Stefanof, 2007). La plus récente étude publiée à ce sujet est celle de Girard et al. (2012). Les effets des noyaux glaciogènes acidifiés (effet SIFI) sur les propriétés nuageuses et sur le bilan radiatif en surface en Arctique pour les mois de janvier et février 2007 ont été évalués à partir de simulations effectuées à l'aide du modèle GEM-LAM (Limited-Area version of the Global Multiscale Environmental Model) (Côté et al., 1998) combinées avec les résultats d'expériences menées en laboratoire de Eastwood et al. (2008; 2009). Les résultats montrent que les particules de poussière acidifiées ont un impact non négligeable sur la microstructure des nuages, la déshydratation de l'atmosphère, le bilan radiatif et la température au-dessus de l'Arctique central. L'acidification des *IN* entraîne des nuages de glace de moyenne et haute altitude d'une faible épaisseur optique et des nuages en phase-mixte de bas niveaux plus fréquents et persistants. L'augmentation du LWP n'affecte pas l'émissivité des nuages en phase-mixte puisqu'à partir d'un certain seuil, ils émettent comme un corps noir ($> 10\text{-}15 \text{ g.m}^{-2}$). Le forçage radiatif des nuages (CRF en anglais pour Cloud-Radiative Forcing) dépendra uniquement du IWP contenu dans les nuages de moyenne et hautes altitudes. Ces changements dans la microstructure du nuage affectent ainsi le bilan radiatif au sommet de l'atmosphère avec une diminution du forçage radiatif des nuages dans l'infrarouge de 0 à -6 W.m^{-2} au-dessus du panarctique. Ceci conduit à un refroidissement de l'atmosphère qui varie entre 0 et -4 K et ainsi favorise la formation de nuages avec une diminution de l'effet de serre de la vapeur d'eau et une augmentation des précipitations. Les résultats montrent que ce refroidissement de l'Arctique est assez grand pour renforcer la circulation troposphérique à grande échelle associée au front polaire à travers l'intensification de la zone barocline. Bref, les modèles climatiques et de prévision ont de la difficulté à simuler la fréquence et la persistance des nuages arctiques observés ce qui entraîne des biais dans les flux radiatifs à la surface. Ces difficultés sont principalement attribuables aux incertitudes dans les concentrations simulées de gouttelettes de nuage et de cristaux de glace (Curry et al. 2000 ; Morrison et al. 2003 ; 2005).

Le manque de connaissances des procédés physiques se produisant en Arctique est la principale source de difficulté lors de la conception de paramétrages utilisés pour la simulation des nuages arctiques. Le peu d'observations valides pour cette région du globe complique également les études réalisées en Arctique, sans oublier la difficulté d'analyser ces nuages à l'aide des observations satellitaires puisqu'en Arctique les nuages sont généralement optiquement minces et de bas niveau. Il y a ainsi peu de contraste thermique entre les nuages et la surface glacée. Les difficultés à simuler les nuages glacés arctiques sont dues à de nombreux facteurs dont la structure verticale complexe de la couche limite arctique, la présence d'ouvertures dans la glace de mer, la persistance de ce type de nuages et leur susceptibilité à être modifiée par les aérosols.

Les aérosols ont un impact important sur le climat via les nuages et la radiation. Les aérosols influencent la taille des gouttelettes de nuage qui, elle, détermine la profondeur optique du nuage et son émissivité, c'est le premier effet indirect des aérosols. Cet effet est également communément appelé l'effet Twomey (Twomey 1974). Une augmentation de la concentration d'aérosols accroît la concentration de gouttelettes et diminue le rayon effectif de celle-ci ce qui réduit la précipitation et allonge la durée de vie du nuage, c'est le deuxième effet indirect des aérosols. D'autres effets indirects, tel que la rétroaction déshydratation-effet de serre (Blanchet et Girard, 1994) ont possiblement un impact important sur le climat arctique via l'influence des aérosols sur la nucléation des cristaux de glace. Les effets indirects des aérosols sont importants au-dessus de l'océan Arctique où de petits changements dans le flux radiatifs à la surface peuvent entraîner des perturbations significatives de l'épaisseur et de la concentration de glace de mer. C'est cette relation étroite qui existe entre aérosols et la microphysique des nuages et des processus de nucléation. La plupart des schémas microphysiques présentement utilisés dans les modèles du climat ne sont pas assez complexes pour les études détaillées de la microphysique des nuages arctiques et de leur interaction avec les aérosols. Dans les modèles climatiques, un traitement plus réaliste de la microphysique de la glace, en particulier de la concentration des cristaux et de la neige est nécessaire pour améliorer les résultats de la simulation des nuages arctiques (Klein et al. 2009).

Les difficultés rencontrées lors de simulations précédentes des nuages arctiques et le besoin de développer des schémas microphysiques plus performants capable de reproduire les interactions complexes entre les nuages et les aérosols sont à l'origine de l'élaboration de ce projet de recherche. L'objectif de ce projet de recherche est de mieux

comprendre le processus de formation des TIC en utilisant les nouveaux paramétrages de nucléation de la glace. Il se compose trois chapitres. Le Chapitre I fait une rétrospective et une mise en contexte du sujet. Le Chapitre II qui est le corps du mémoire est un article soumis pour publication dans un journal scientifique. Cet article intitulé « Importance of physico-chemical properties of aerosols in the formation of Arctic ice clouds » vise à mieux comprendre le processus de formation des TIC en utilisant les nouveaux paramétrages de nucléation de la glace. Pour ce faire, nous avons implémenté certains de ces paramétrages (des 2 approches) dans GEM-LAM pour simuler par la suite les nuages glacés observés au cours de la campagne de mesure (ISDAC) en Alaska. Une attention particulière a été portée sur les nouveaux paramétrages de l'approche singulière. Les résultats de simulation des TIC-2 observées le 15 et le 25 avril 2008 (cas polluées ou acides) et TIC-1 observés le 5 avril 2008 (cas non polluées) y sont présentés ainsi que différentes études statistiques. Enfin, le Chapitre III se veut être une conclusion générale associée à certaines perspectives.

CHAPITRE II

IMPORTANCE OF PHYSICO-CHEMICAL PROPERTIES OF ICE NUCLEI IN THE FORMATION OF ARCTIC ICE CLOUDS

Setigui Aboubacar KEITA¹ and Eric GIRARD¹

¹ESCER Centre, Department of Earth and Atmospheric Sciences, University of Quebec At
Montreal, H3C 3P8, Montreal, Quebec, Canada

Manuscript in preparation for Pure and Applied Geophysics

*Corresponding author

Tel: +1 514-449-5099

Email: ksetigui@yahoo.fr

2.1. Abstract

Ice clouds play an important role in the Arctic weather and climate system but interactions between aerosols, clouds and radiation are poorly understood. Consequently, it is essential to fully understand their properties and especially their formation process. Extensive measurements from ground-based sites and satellite remote sensing reveal the existence of two Types of Ice Clouds (TICs) in the Arctic during the polar night and early spring. TIC-1 are composed by non-precipitating very small (radar-unseen) ice crystals less than $30\text{ }\mu\text{m}$ in diameter suspended in the air. The second type, TIC-2, are detected by the radar and are characterized by a low concentration of large precipitating ice crystals ice crystals ($> 30\text{ }\mu\text{m}$). To explain these differences in microstructure, we make the following assumption: TIC-2 formation is linked to the acidification of aerosols, which inhibit the ice nucleating properties of ice nuclei (*IN*). As a result, the *IN* concentration is reduced in these regions, resulting to a lower concentration of larger ice crystals. If water vapor available for deposition is the same, these crystals reach a larger size. Models currently don't separate these different types of clouds. This problem is due to the parameterization implemented for ice nucleation. Over the past 10 years, several parameterizations of homogeneous and heterogeneous ice nucleation have been developed to reflect the various physical and chemical properties of aerosols. The parameterizations are developed according to two main approaches: stochastic (that nucleation is a probabilistic process, which is time dependent) and singular (that nucleation occurs at fixed conditions of temperature and humidity and time-independent). There is currently a debate in the scientific community to determine the most realistic approach. This research aims to better understand the formation process of TICs using a newly developed ice nucleation parameterizations. For this purpose, we implement some parameterizations (2 approaches) into the Limited Area version of the Global Multiscale Environmental Model (GEM-LAM) and use them to simulate ice clouds observed during the Indirect and Semi-Direct Arctic Cloud (ISDAC) in Alaska. We use both approaches but special attention is focused on the new parameterizations of the singular approach. Simulation results of the TICs-2 observed on April 15th and 25th (polluted or acidic cases) and TICs-1 observed on April 5th (non-polluted cases) will be presented. Our result shows that the best approach is the singular stochastic with the change of contact angle in both cases. The singular approach simulated only partially TIC-1 and systematically overestimates the TIC-2. It also underestimated *Ni* at different range of *TT* especially at the value up to $\sim -25\text{ }^{\circ}\text{C}$. However, one systematic error obtained in this study by all schemes is the underestimation of *Si* especially near the top of the investigated clouds. For polluted events, ORI's limitation in ice nucleation helps to reproduces very well the low concentration of large ice crystals.

Keywords: Arctic ice clouds, cloud microphysics, numerical modeling, Arctic climate, GEM-LAM

2.2. Introduction

Shupe et al. (2011a) have shown that the annual cloud fraction derived from ground-based remote-sensors measurements increases from 58 to 83 % between winter and summer at 6 Arctic observatories over land or near land-ocean shore (Barrow, Atkasuk, SHEBA, Eureka, Ny'Alesund, Summit). Although mixed-phase clouds are present throughout the year, Shupe (2011b) has shown that ice-only clouds are more common than mixed-phase clouds during the cold season with similar longevity according to the annual-average statistics for the Western Arctic sites (Barrow, Eureka, SHEBA). The Arctic surface radiative budget largely depends on the presence of clouds. Shupe et al. (2011a) have shown that the wintertime and summertime cloud radiative forcing at the surface varied from 58 W m^{-2} to 83 W m^{-2} respectively during the Surface and Heat Energy Budget of the Arctic (SHEBA) campaign in 1997-98 over the Barents Sea. Mixed-phase clouds are the main contributor to the cloud radiative forcing at the surface. Ice clouds have a relatively small effect on the radiative budget at the surface (Intrieri and Shupe, 2004; Lampert et al., 2009). However, ice clouds can have a substantial effect on the radiative budget at the top of the atmosphere (TOA) during winter. A positive longwave cloud radiative forcing of $\sim 10 \text{ W m}^{-2}$ has been derived from observations and modeling studies in the Arctic during winter (Beesly, 2000; Doeling et al., 2001; Girard et al., 2014). Ice clouds are generally colder than low-level mixed-phase clouds or the surface (in the absence of mixed-phase clouds). Therefore, ice clouds contribute to keep more energy in the Earth-atmosphere system because of their impact on reduced IR cooling. The magnitude of the longwave cloud radiative forcing at the TOA mostly depends on the ice cloud temperature, vertical structure, optical depth and microstructure.

Using Cloudsat and CALIPSO remote sensing dataset for the years 2008 to 2009, Grenier et al. (2009) found that two types of ice clouds (TICs) are present in the Arctic. The first type (hereafter TIC-1) is formed by a high concentration of small ice crystals (Gultepe et al. 2014; 2015) whereas the second type (hereafter TIC-2) is composed by a small concentration of large precipitating ice crystals. According to Grenier et al. (2009), the second type of ice clouds is associated to high concentrations of aerosols possibly of anthropogenic origins. Jouan et al. (2012a) have analyzed several ice clouds observed during the Indirect and Semi-Direct Aerosol Campaign (ISDAC), which took place over the North Slope of Alaska in April 2007. Comparing ice clouds with similar ice water

contents, they have also found that there were two types of ice clouds (TIC-1 and TIC-2) as reported by Grenier et al. (2009). TIC-1 (TIC-2) was characterized by ice number concentration larger (smaller) than 10 L^{-1} and an effective ice crystal radius smaller (larger) than $110 \mu\text{m}$. Results have also shown that most of the differences between TIC-1 and TIC-2 were confined at cloud top where ice nucleation mostly occurs. By performing a back trajectory analysis, Jouan et al. (2012b) have found that out of the 3 TIC-2 clouds analyzed, 2 were associated with polluted air masses (long-range transport) in which the sulfur dioxide (SO_2) concentration was relatively large whereas 3 out of 4 TIC-1 clouds were formed in pristine air masses with low SO_2 concentrations. Jouan et al. (2012b) have also been able to identify TIC-2 clouds formation in highly acidic air masses influenced by active volcanoes emitting SO_2 . These results suggest that TIC-2 ice clouds are likely to be associated to highly acidic aerosols.

Recent laboratory studies suggested that efficient ice nuclei (such as mineral dust particles) can lose their ice nucleating ability if they are coated with sulphuric acid (e.g. Eastwood et al., 2009, R.C. Sullivan et al., 2010, Demott et al. 2012). In atmospheric conditions, ice nucleation in clouds can occur either by homogeneous freezing of water droplets or by heterogeneous ice nucleation. Homogeneous freezing is the spontaneous freezing of a water (or haze) droplet. According to Pruppacher and Klett (1997), the homogeneous freezing rate of cloud droplets is significant at temperatures below -38°C (Pruppacher and Klett, 1997). Heterogeneous ice nucleation requires the presence of an ice nucleus, which initiates the formation of an ice crystal. Four modes of heterogeneous ice nucleation have been identified: deposition nucleation, immersion freezing, condensation-freezing and contact freezing. In the immersion mode, ice nucleation occurs on a solid particle immersed in either an aqueous solution in subsaturated air with respect to liquid water or in an activated cloud water droplet. In the condensation-freezing mode, ice nucleation occurs on a solid particle immersed in an aqueous solution and above liquid water saturation. In the deposition mode, ice nucleation occurs on a solid particle or a solid particle only partially immersed in an aqueous solution. Finally, in the contact mode, ice nucleation occurs on a solid particle in contact with a water droplet.

When uncoated, ice nuclei are activated by water vapor deposition in an environment that is saturated with respect to ice but subsaturated with respect to liquid water. Once coated with sulphuric acid, the ice nuclei nucleate ice crystals by either immersion or condensation-freezing modes (e.g., Eastwood et al., 2009; Chernoff and Bertram, 2010).

Results of these laboratory studies have shown that while ice nucleation occurs at relatively low ice supersaturation on uncoated dust particles, ice nucleation by immersion or condensation-freezing of sulphuric acid coated dust particles occurs at a much higher ice supersaturation near the saturation with respect to liquid water.

Over the past 10 years, several parameterizations of homogeneous and heterogeneous ice nucleation have been developed to reflect the various physical and chemical properties of aerosols (e.g., Hoose et Möhler, 2010; DeMott et al., 2011). The parameterizations are also developed from laboratory studies on aerosols of different chemical compositions. The parameterizations are also developed according to two main approaches: stochastic (nucleation is a probabilistic process, which is time dependent) and singular (nucleation occurs at fixed conditions of temperature and humidity and time-independent) (Wheeler and Bertram, 2012; Murray et al., 2012).

In this study, we hypothesized that TIC-1 clouds formed in pristine air masses in which the ice nuclei are either not coated or coated with a non-acidic solution while TIC-2 clouds formed in polluted environment in which most of the *IN* are coated with highly acidic solution. The objective of this research is to simulate the TIC-1 and TIC-2 clouds observed during ISDAC using the appropriate parameterizations for ice nucleation, which are derived from laboratory studies. In addition to the original ice nucleation parameterization of Meyers et al. (1992) implemented in the microphysics scheme of Milbrandt and Yau (2005), three other ice nucleation parameterizations are tested and they are as: (1) the stochastic parameterization of Eastwood et al. (2008, 2009), for uncoated and sulphuric acid-coated kaolinite particles; (2) the singular approach of Wheeler and Bertram (2012) for kaolinite and illite dust particles and the singular approach of Niemand et al. (2012). While the first 2 types of parameterizations were based on commercially available dust particles, the latter is based on natural dust particles collected at several locations (e.g. Sahara, Cairo, etc.). We use these three parameterizations because they form a representative sample of different parameterisations currently available.

The paper is organized as follow. In the next section, the model and the ice nucleation parameterizations are described. Section 3 and 4 present the observational dataset (ISDAC) and the experimental set-up respectively. In section 5, simulation results are described and analyzed. A discussion and conclusions are presented in sections 6.

2.3. Model description

The limited-area version of the Global Multiscale Environmental Model (GEM-LAM) is used in this study. The numerical formulation of the model is described by Côté *et al.* (1998). The radiation scheme is from Li and Barker (2005) and is based on the correlation-k method with 9 bands in the longwave frequencies and 3 bands in the shortwave frequencies. Emission and absorption of the following gaseous species are accounted for: H_2O , CO_2 , O_3 , N_2O , CH_4 , CFC11-14. The land-surface scheme ISBA (Interactions Soil-Biosphere-Atmosphere) developed by Noilhan and Planton (1989) is used to determine the lower boundary conditions for the vertical diffusion of temperature, moisture, and momentum, as well as evaluating the evolution of ten prognostic variables: the surface temperature, the mean soil temperature, the near-surface soil moisture, the liquid and frozen bulk soil water content, the liquid water retained on the foliage of the vegetation canopy, the equivalent water content of the snow reservoir, the liquid water retained in the snow pack, the snow albedo, and the relative snow density.

The microphysics scheme used in this study is from Milbrandt and Yau (2005). Two versions of this scheme are available in GEM-LAM (single and double moments). In this study, we use the two-moment version. The scheme includes the following prognostic variables: the liquid water mixing ratio and the number concentration of particles for droplets, ice crystals, rain, snow, hail and graupel. The description of the various microphysical processes is available in Milbrandt and Yau (2005). In the original version of the microphysics scheme that include deposition and condensation freezing are a function of ice supersaturation following Meyers *et al.* (1992). Contact freezing is parameterized following Young (1974), in which the number concentration of contact *IN* is parameterized as a function of temperature following Meyers *et al.* (1992). Immersion freezing of activated rain and cloud water droplets follows the parameterization of Bigg (1953). The parameterization for homogeneous freezing of water droplets follows Demott *et al.* (1994) in which the homogeneous freezing occurs between -30°C and -50°C .

Substantial modifications have been made to the original version of the microphysics scheme to account for the heterogeneous ice nucleation on both uncoated and coated ice nuclei. Four modes of heterogeneous ice nucleation are represented in this modified version of the microphysics scheme: deposition ice nucleation, contact freezing, immersion

and condensation freezing of un-activated haze droplets, and immersion freezing of activated cloud droplets. No modifications have been made to the original scheme for the parameterization of contact freezing.

Deposition ice nucleation on uncoated ice nuclei and immersion freezing of sulphuric acid coated ice nuclei is parameterized following Girard et al. (2012). These parameterizations are based on the classical nucleation theory (CNT) (Pruppacher and Klett 1997). The CNT is a stochastic approach in which the nucleation rate depends on the contact angle between the ice embryo and the ice nuclei. In the parameterization used in Girard et al. (2014), the contact angle is derived based on laboratory studies of Eastwood et al. (2008; 2009) on uncoated ($\theta = 12^\circ$) and sulphuric acid-coated ($\theta = 26^\circ$) kaolinite particles. The equation used to determine the number of ice crystals (N_f) in a given time step (Δt) is describing as follow:

$$N_f(\Delta t) = N_0[1 - \exp(-JA_{kaolinite}\Delta t)] \quad (2.1)$$

where $A_{kaolinite}$ is for the surface area of the kaolinite particles, N_0 the total number of available particle and the J is the nucleation rate of embryo per unit of particle and is defined as:

$$J(\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}) = B \exp\left(\frac{-\Delta G^*}{kT}\right) \quad (2.2)$$

$$\text{where } \Delta G^* = \frac{16\pi\sigma_{iv}^3 f(\cos \theta)}{3(\rho_i R_v T \ln S_i^2)} \quad (2.3)$$

where B is the pre-exponential factor (Pruppacher and Klett, 1998), ΔG^* the critical Gibbs free energy for the formation of an ice embryo, k the Boltzman constant, σ_{iv} the surface tension between ice and water vapor, ρ_i the bulk ice density, R_v the gas constant for water vapor, T the temperature and S_i the saturation ratio with respect to ice. The $f(\cos \theta)$ a function that depends on the contact angle as defined by Pruppacher and Klett (1997) for an infinite plane surface.

The singular analysis use here for heterogeneous ice nucleation assume that nucleation occurs at fixed conditions of temperature and humidity and time-independent. This concept was used by Connolly et al., (2009), Niedermeier et al. (2010), Lüönd et al. (2010), and Murray et al. (2011). This research, Both Wheeler and Niemand singular

parametrization are tested. Recent studies have shown good agreement between the experimental data and the singular model (e.g. Wheeler and Bertram, 2012). In this approach, it is assumed that the particles have a surface density of active sites, n_s , which is a function of the saturation ratio with respect to ice S_{ice} , but independent of temperature over the narrow range of temperatures investigated (239–242 K). The assumption of temperature independence for n_s is reasonable based on previous measurements (Eastwood et al., 2008). It shows that the onset ice saturation ratio for deposition ice nucleation, S_{ice} , does not vary much with temperature over the range of 236–246 K. It is also assumed that the fraction of particles nucleated at a given S_{ice} is independent of time but related to $n_s(S_{ice})$ as follows:

$$\frac{N_f}{N_0} = 1 - \exp[-\pi D^2 n_s(S_{ice})]. \quad (2.4)$$

where N_0 is the total number of available particles, N_f number of particles nucleated, D the diameter of the particle and $\frac{N_f}{N_0}$ the fraction of particles nucleated. The surface density of active sites, $n_s(S_{ice})$, comes from Wheeler and Bertram, 2012 with the following expression for both kaolinite and illite:

$$n_s(S_{ice}) = \begin{cases} 0, & S_{ice} \leq -A_2 \text{ ou } S_{ice} \geq 1 \\ A_1 (S_{ice} + A_2)^2, & \text{otherwise.} \end{cases} \quad (2.5)$$

where for kaolinite $A_1 = 1.20 \times 10^6 \text{ cm}^2$ and $A_2 = 0.8547$. For illite $A_1 = 1.46 \times 10^6 \text{ cm}^2$ and $A_2 = 0.9415$.

Niemann et al. (2012) have found that the formation of ice on natural dust particles is mainly related to the temperature and the particle surface area for the immersion freezing mode. The density of ice-active surface sites $n_s(T)$ is considered constant throughout the size distribution, assuming that the aerosol composition and surface properties do not vary with size. The ice active surface density is given by the following equation:

$$n_s(T) = 5 \exp[-0.517 (T - 273.15) + 8.934] [\text{m}^{-2}] \quad (2.6)$$

where T is the temperature.

2.4. Observations

The observational dataset is from the Department of Energy (DOE) Atmospheric Radiation Measurement (ARM) Indirect and Semi-Direct Aerosol Campaign (ISDAC) (McFarquhar et al., 2011), which was conducted over the North Slope of Alaska (NSA), during April 2008. The main objective of this campaign was to examine the influence of the arctic aerosol on cloud microphysical properties and on the surface energy balance. During ISDAC, the National Research Council of Canada (NRC) Convair-580 was equipped with 41 instruments including a complete set of dynamic, thermodynamic, radiation, aerosol and microphysical sensors. A set of 27 scientific flights was performed from 1 to 30 April 2008 under various weather conditions. Flight profiles consisted of spiral and ramped ascents and descents through clouds and constant altitude legs within and outside clouds between Barrow and Fairbanks. The strategy was also to coordinate flights with other aircrafts (NASA DC8, P-3B, B200, NOAA WP-3D) and satellite overpasses (A-Train).

Among the ISDAC in-situ measurements, in this study the following variables are used: the cloud ice content (IWC), number concentration of ice crystals (N_i), temperature (T) and relative humidity with respect to ice (RHi). The mean ice crystal radius (R_i) is calculated assuming the spherical crystals and a monomodal size distribution with fixed IWC and N_i . According to Jouan et al. (2012a), the uncertainties on the measurements are the following: 10.9% for RHi , 50% for N_i , 75% for IWC and $\pm 0.5^\circ\text{C}$ for T . Using the IWC and N_i uncertainties, it can be shown that the uncertainty on R_i is 97%. More details on uncertainties and biases related to these measurements are described in details in McFarquhar et al. (2011) and Jouan et al. (2012a). A recent study on the large-scale transport of aerosols to the north slope of Alaska during April 2008 was performed by Atkinson et al. (2011). Results were obtained using synoptic condition analysis, surface lidar, stratospheric balloon aerosol measurements and air mass back trajectory studies using the Lagrangian Particle Dispersion Model (FLEXPART). Their study showed high aerosol concentration events over Alaska throughout April 2008. Pristine air masses with very low aerosols concentration dominate the first few days of April (April 1st to mid-day April 5th), which is in agreement with satellite observation and PCASP aerosol measurements obtained from flights F12 and F13 (see). The synoptic situation indicated that an atmospheric flow entering the Alaska Interior from the western North Pacific

Ocean due to a low-pressure system west of Alaska. Atkinson et al (2011) suggest that the early April air mass had lost a lot of aerosols by spending a long time over the Pacific Ocean and forced topographic ascent (Arctic Range), which yields to wet deposition/precipitation prior to its arrival in Alaska.

Four clouds systems used in this study were observed during the ISDAC flights, F12, F13, F21 and F29; information on these flights is available in Table 2.1. Two of the 4 selected clouds for this study were observed during flights that took place on April 5th (F12 and F13). The F12 (April 5th 2008, 01:15:35 – 01:34:06) cloud is characterized by a high concentration (~3000 #/L) of relatively small ice crystals (10-30 μm radius) at the top of the cloud (400-450 hPa). Those high concentrations of small crystals matches very well the definition of a TIC-1 discussed in the introduction. This corresponds to the highest ice crystal concentrations and the smallest ice crystal radius of all studied clouds. Later that day, another cloud was observed during flight F13 (April 5th 2008, 20:35:26 - 21:00:06), which is characterized by a relatively high crystal concentrations (100-200 #/L) and small crystal radius (25-50 μm) throughout the cloud (400-785 hPa). This large vertical extension of fairly small crystal matches very well the definition of a TIC-1. The F13 cloud had the 2nd highest crystal concentrations with 2nd smallest crystal radius of all studied clouds.

During the following days (midday April 5th to April 17th, 2008), Asian dust with smoke plausibly due to a flow from northern China and southern-east Siberia was present and maintained its structure trough a high pressure system in the central North Pacific (Jouan et al.,2012). Unlike the first few days of April, the air mass did not spend a long time over the Pacific Ocean. Biomass burning from Kazakhtsan and southern Siberia are the main sources of smoke observed during that period (Warneke et al., 2009). The dust aerosols possibly came from the Gobi and Takla Makan dust-raising events (March 28th and April 2nd 2008, respectively). Given the large-scale circulation patterns, the dust aerosols would have reached Alaska Interior (Atkinson et al.,2011). According to Burton et al. (2011), there was a larger occurrence of haze and smoke than dust during the several flights made over the Fairbanks-Barrow area during the ARCTAS (Artic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites) campaign. From (April 17th to April 23rd, 2008), the atmospheric flow was dominated by the incursion of a large low-pressure system from west Alaska into the Bering Sea. An anticyclone east of the low-pressure system resulted to a strong flow of warm air over the Alaska. As the low-pressure

system moved southward, the travel distance increased by led to a decrease in smoke and dust particles till late April.

The two remaining ice clouds investigated in this study were observed during these 2 weeks: flight F21 (April 15th 2008, 00:55:40 – 01:42:07) and F29 (April 25th 2008, 04:08:22 – 04:27:51). The F21 cloud is characterized by a small ice crystal concentration ($< 30 \text{ \#}/\text{L}$) of relatively large ice crystals (50 – 140 μm). That low concentration of larger ice crystals fits very well the description of a TIC-2 as defined in (Grenier et al. 2009). The F21 cloud had the 2nd larger ice crystal radius of all studied clouds. The F29 cloud is also characterized by a low concentration (5-30 $\text{\#}/\text{L}$) of large ice crystals (80-180 μm), which also corresponds to the TIC-2 definition. The F29 cloud had the largest ice crystal radius of all studied clouds.

These studies suggest that the TIC-1 (F12 and F13) formed either in a pristine environment or in a transition period where a higher concentration of aerosols arrives (midday April 5th). Both F21 and F29 clouds appear to form in a polluted environment of dust and smoke possibly with a highly acidic coating. This is supported by satellite observation from the Ozone Monitoring Instrument (OMI) over the north slope of Alaska, which shows an increase in SO_2 concentration for the days leading to April 15th (F21) and the same for April 25th (F29) (Jouan et al., 2012b). The presence of SO_2 , which can yield to sulfuric acid, confirms the Atkinson et al. [2011] results that aerosols on April 15th and April 25th were acidic. In a recent study, Jouan et al. (2012b) found that the high concentration of SO_2 that was present over the North Slope of Alaska during this period c from the active volcanoes. Furthermore, IN measurements on April 15th in Barrow show a very low IN concentration. This suggests that aerosols were highly acidic during this period Jouan et al., (2012a; 2012b), which further supports the Atkinson et al. (2011) finding.

2.5. Numerical simulation set-up

To simulate these TICs, the following experimental set-up was used. A 48-hour simulation over a large domain was first performed. The large domain has 320 by 320 grid points with a horizontal resolution of 10 km and 93 levels in the vertical. This simulation is driven by the Canadian Meteorological Centre global analysis at the lateral boundaries.

This global analysis has uniform 800×600 latitude-longitude horizontal grid and the horizontal resolution is 0.45 in longitude and 0.33 in latitude. Lower boundary conditions for sea ice and SST were taken from AMIPIL. This simulation is used to drive two inner smaller domains, one centered over Barrow and the other one over Fairbanks. These small domains have 240×240 grid points with a horizontal resolution of 2.5 km. Both the large and small domains are shown in Figure 1. The microphysics variables are transferred from the larger to the smaller domain. A spin-up of 24 h is allowed. Results are compared to observations between 24 h and 48 h in the simulations. For the comparison between the simulated and observed variables, results are averaged over a tile of 10 by 10 km in which the observations location is centered. This methodology allows to better represent the fact that observations taken during spiral ascents can have a horizontal extent of few km. Also, the perfect temporal and spatial match between a 3D model and a single-point observation is not likely. Therefore, the spatial average of the results reduces the chances of having errors associated to a delay in time and/or space of the model simulation with the observations.

The six versions of the microphysics scheme used for our simulations showed in Table 2.2. ORI refers to the original version of the microphysics scheme (Meyers et al., 1992 for deposition and condensation freezing), which does not represent any particular type of air masses. (AC) and (NAC) are the versions of the scheme using the CNT to parameterize deposition and immersion freezing as described in section 2. (NAT2), (NAT3) and (NAT1) respectively Wheeler et al. (2012) for the illite, Wheeler et al. (2012) for the kaolinite and Niemand et al. (2012) for the desert dust are used with singular approach to parameterize deposition and immersion freezing as described in section 2. In AC, a constant angle of 26° is used, which correspond to sulphuric acid coated ice nuclei. In NAC, the *IN* are assumed to be uncoated and a constant contact angle of 12° is prescribed. Both NAT2 and NAT3 are assumed uncoated *IN* whereas NAT1 simulates non-acidic coated *IN* according to (Niemand et al. 2012).

Different analyses were performed. In the first part, simulated and observed microphysics variable are compared. In the second, simulated *Ni*, *Ri* and *RHi* are compared to observed values on scatter plots. The root-mean squared error (RMS), the bias and the mean relative error (RE) are also calculated.

2.6. Results

A comparison of the observed and simulated (NAT1, NAT2, NAT3, ORI, NAC and AC) vertical profiles of temperature (TT) for the F12, F13, F21 and F29 is presented in the Figure 2 and 3. In all cases, cloud top is around 400 hPa with temperatures ranging from ~ -40 to $\sim -30^\circ\text{C}$. The six versions of the microphysics scheme capture very well the temperature of the upper part of these clouds except for the F21 where the simulated TT is too cold. In the F12, there is a cold bias in the lower levels while the F13 and F29 are pretty well reproduced at all levels. In all cases, the TT errors are generally between 0 and 2°C and never exceed 3°C . These results show that the model is particularly good to simulate the temperature profiles in the upper half of the ice clouds, which is important since most of the ice crystal nucleation occur in the upper levels (Jouan et al., 2012).

2.6.1. Vertical Profiles of RH_i , N_i and R_i

The vertical profiles of the observed and simulated ice crystal number concentration using the NAT1, NAT2, NAT3, ORI, NAC and AC, for F12 are presented in figure 4a. Observations show a high ice crystal concentrations of $\sim 3000 \text{ L}^{-1}$ within a thin layer at the cloud top. The ice crystal concentration quickly decreases by a factor 10 ($\sim 100 \text{ L}^{-1}$) below this thin layer. At the cloud top ($\sim 420 \text{ hPa}$), all schemes underestimate the ice crystal number concentration except the NAT2 and NAC, which reproduce relatively well the value of N_i ($N_i \sim 1000 \text{ L}^{-1}$). At the mid-levels (500-550 hPa), they all underestimate the ice crystal concentration with values close to 0. This does not seem to be related to the schemes formulation but rather to the intrusion of drier air at these levels (see Figure 6a) in these 4 simulations. The NAC overestimate ISDAC values below 100 L^{-1} in the lower level (750-800 hPa). The AC and ORI strongly underestimate N_i at all cloud levels by a factor varying between 10 and 100. It should also be mentioned that no schemes capture the observed very low concentration of ice crystals in the lower part of the cloud.

The vertical profiles of the observed and simulated relative humidity with respect to ice (RH_i) simulated by GEM-LAM for the F12 are presented in figure 6a. Observations show high values of RH_i ($\sim 130\%$) at cloud top. The humidity then slowly decreases with

decreasing altitude to reach a minimum of $\sim 80\%$ at ~ 750 hPa. The NAT1 and NAC underestimate RHi in the upper levels especially at ~ 500 hPa where there is a sudden drop in humidity likely due to the intrusion of dry air at that level. They both do a decent job at reproducing RHi (90-100 %) in the mid-levels (550-650 hPa) and they overestimate it in the lower levels. The NAT2 and NAT3 overestimate RHi in the upper levels (~ 450 hPa) but do a pretty good job in the mid-levels. The AC underestimates RHi at cloud top (400-450 hPa) and overestimates it below ~ 550 hPa. The ORI captures relatively well RHi (90-110 hPa) from the mid levels (~ 600 hPa) to the cloud top (~ 400 hPa). In the lower levels, the ORI overestimates RHi like the other schemes. It should be noted that the large uncertainties ($\sim 11\%$) associated with RHi measurements makes the evaluation of model simulation quite difficult since most schemes remain between the possible the uncertainty range over most of the cloud.

The vertical profiles of the observed and simulated cloud ice crystal mean radius simulated by GEM-LAM for F12 are presented in 8a. Observations showed small ice crystals at cloud top ($\sim 15 \mu\text{m}$) and an increase to about $30 \mu\text{m}$ in the mid and lower cloud levels. NAC does a good job from the cloud top levels to the low levels. The NAT1 reproduce well the ice crystal mean radius (20-35 μm) at the top (400-500 hPa) of the TIC-1. However, it overestimates R_i from mid to lower levels (550-750 hPa). The NAT2, NAT3 and AC strongly overestimate the ice crystal mean radius throughout the clouds due to an underestimation of N_i . The ORI overestimates R_i at cloud top (400-450 hPa) and in the lower levels (650-750 hPa) while it slightly underestimates R_i in the mid-levels (500-600 hPa).

The vertical profiles of the cloud ice crystal number concentration simulated by GEM-LAM and observed by ISDAC for the F13 are presented in figure 4b. The observed N_i values range from 70 to 200 L^{-1} throughout the cloud. The NAC captures relatively well N_i except for 2 layers. There is a strong N_i underestimation between 450 and 525 hPa, which seems to be related to the presence of drier air at these levels (see Figure 6b). At top levels (400-500 hPa), the NAT1 and NAT2 simulations reproduce the same order of magnitude of the observed N_i values at cloud top while the NAT3 substantially overestimates N_i at this level. The NAT1, NAT2 and NAT3 underestimate N_i by a factor of 10 ($\sim 10 \text{ L}^{-1}$) below the upper part of the ice cloud. Similarly to the F12 case, both AC and ORI strongly underestimate N_i at all levels of the F13 cloud.

The observed and modeled vertical profiles of the relative humidity with respect to ice (RH_i) for the F13 are presented in figure 6b. Observations show a strong RH_i decrease (125%- 105%) from 400 hPa to 490 hPa. RH_i then slowly drops from 110% at 510 hPa to 95% at 785 hPa. All the schemes strongly underestimate RH_i at cloud top (400-475 hPa) with values close to the saturation with respect to ice. The NAT1, NAT2, NAT3 schemes simulate a nearly constant RH_i at all levels. They overestimate at cloud mid-levels (510-650 hPa) and do a good job at the low levels like all of schemes. The AC and ORI simulate larger RH_i values than the rest of the schemes. However they still underestimate RH_i at cloud top. The NAC does a decent job to catch RH_i at all levels except near the top. These results are similar to what was obtained for the F12 case.

The observed and modeled vertical profiles of the cloud ice crystal mean radius for the F13 are presented figure 8b. Observations show small ice crystals at cloud top (~ 25 μm) and a gradual increase to ~ 50 μm in the lower levels. The NAC and the ORI reproduced quite well the R_i vertical profile within the quite large uncertainty range of the observations ($\pm 97\%$). The AC strongly overestimates R_i at all levels of the cloud with values of ~ 55 μm at the cloud top and ~ 140 μm at cloud bottom. The NAT1, NAT2, NAT3 do a good job at cloud top (400-500 hPa) but they strongly overestimate R_i with values ranging from ~ 60 and 130 μm from the mid to low levels.

Results obtained with the NAT1, NAT2, NAT3, NAC, AC and ORI for the two TIC-2 clouds (F21 and F29) are very similar. Therefore, simulation results of these two clouds are discussed together. Figure 5a and 5b show the observed and simulated vertical profile of the ice crystal number concentration for the F21 TIC-2 and F29 TIC-2 clouds observed on April 15th and 29th respectively. Both clouds are characterized by a small concentration of ice crystals varying between 1 and 30 L^{-1} from cloud top to cloud base. The NAT1 and the NAC scenarios strongly overestimate N_i by one to two orders of magnitude. The AC and ORI simulations capture well the small ice crystal concentration of these two clouds with simulated N_i values of the same order of magnitude than the observations (~ 10 L^{-1}). The NAT2 and NAT3 either strongly underestimate or overestimate N_i depending on cloud height for both cases.

The observed and simulated vertical profiles of the relative humidity with respect to ice (RH_i) for F21 and F29 respectively are presented in figure 7a and 7b. Observations show that RH_i peaks in the upper part of the clouds (400-450 hPa) with values up to 150%

for the F21 cloud and 120% for the F29 cloud. RHi then gradually decreases to values varying from 100 to 120% for both clouds. No schemes do a good job in both cases F21 and F29 to simulate RHi vertical profile within the uncertainty range of the observations ($\pm 50\%$) except AC. It better captured the cloud top RHi peak in both clouds and the gradual decrease toward the cloud base. The NAT1 and the NAT2 do a decent job because of the underestimation of Ni (see Figure 2.5).

All of these schemes underestimate at the top levels (400-450 hPa) for the F21 case. However, the AC and ORI still underestimate RHi for the F21 cloud and overestimate for the F29 but to a lesser extent than the rest of the schemes.

The results of observed and simulated vertical profiles of the cloud ice crystal mean radius during the F21 and F29 are presented in figure 9a and 9b. Observations show a rapid growth of the ice crystal size at cloud top ($\sim 60 \mu\text{m}$) commonly seen in TIC-2 formation (Jouan et al., 2012b). Then, Ri gradually increased reaching $\sim 140 \mu\text{m}$ at cloud base in both clouds. The NAT1 and NAC strongly underestimate Ri at all levels of both clouds with values of $\sim 20 \mu\text{m}$ in the upper levels to 40-55 μm at cloud base. Both NAT2 and NAT3 underestimate but to a lesser extent than the NAT1 and NAC. The underestimation of Ri for these schemes is related to the overestimation of Ni for these clouds. AC and ORI simulate Ri values that are closer to the observations, which is consistent with the fact that Ni is also better simulated by these two schemes for these cases.

From the vertical profiles, one clearly sees that the NAC, NAT1, NAT2 and NAT3 produce smaller ice crystals in a higher concentration, which matched relatively well clouds observed during the F12 and F13. However, these schemes do not captured the observed microstructure and RHi of the two other ice clouds (F21 and F29). But all of the scenarios mentioned were developed to reproduce ice nucleation in a pristine environment similar to conditions observed during the F12 and F13. The AC and ORI versions of the scheme simulate small concentrations of larger crystals, which match relatively well the observed microstructure the ice clouds observed during the F21 and F29. However, the AC and ORI did not reproduced the 2 clouds formed in a pristine environment (F12 and F13). The AC version of the scheme was developed to reproduce ice nucleation in polluted environments characterized by IN coated with sulphuric acid similar to the F21 and F29 air masses conditions (Jouan et al., 2013). The ORI version of the scheme better simulated F21 and F29 clouds compared to the F12 and F13 clouds. In the ORI, Ni is limited by the

IN concentration derived from the Meyers et al. (1992) empirical relationship. This limitation of ice crystal nucleation is likely to explain the low values of *Ni* and larger values of *Ri* for each simulation. Finally, all schemes underestimate *RHi* particularly at cloud top.

2.6.2. Statistical analysis

A statistical analysis is used to document the uncertainty of model simulations and described below. The TIC-1 clouds (F12 and F13) are treated together and the performance of NAC, NAT1, NAT2 and NAT3, which are the schemes specifically developed for the simulation of ice clouds formed on non acidic aerosols, is evaluated. AC is evaluated against the TIC-2 clouds F21 and F29. ORI is considered for all clouds since it has not been designed for any particular types of ice cloud. In this analysis, simulated *Ni*, *Ri* and *RHi* are compared to observed values on scatter plots. A 1:1 line is shown in each plot to illustrate a perfect match. The root-mean squared error (RMS), the bias and the mean relative error (*RE*) are also calculated as follow:

$$RMS = \left[\frac{1}{N} \sum (X_{mod} - X_{obs})^2 \right]^{1/2} \quad (5.1)$$

$$Bias = \frac{1}{N} \sum (X_{mod} - X_{obs}) \quad (5.2)$$

$$RE = \frac{100}{N} \sum |X_{mod} - X_{obs}| \quad (5.3)$$

where X_{mod} , X_{obs} and N are the simulated variable, observed variable and the sample size respectively. The RMS error indicates the extent to which the model captures the right observed values at the right time and location in the vertical. The bias is used to detect any systematic errors made by the model for the simulation of a given cloud parameter. Finally,

the relative error gives an insight as to how important are the RMS and the bias to the absolute value of a given parameter.

Co-variations of simulated variables such as Ni vs T and Ni vs RHi are also investigated to see whether the simulated values reproduce these observed relationships. Finally, co-variations of model errors with parameters such as T and RHi are performed to identify any particular atmospheric conditions where the schemes perform better or worse. All the statistical parameters can be found in Tables 2.3 and 2.4.

2.6.2.1. TIC-1 clouds F12 and F13

2.6.2.1.1. Co-variability of Ni with TT and Si

The simulated and observed co-variabilities between Ni and TT for F12 and F13 are presented in the figure 2.10 to 2.14. Observations showed that Ni increases when TT decreases with a correlation coefficient of -0.39. NAC reproduces this relationship between Ni and TT remarkably well. The other schemes generally also reproduce the Ni increase with temperature. However, the increase is too steep with correlation coefficients over -0.5. Furthermore, it can also be noticed that Ni is generally strongly underestimated by NAT1, NAT2, and NAT3 for all temperatures. The Ni underestimation is however not related to temperature (see Figure A.1). NAT1 and NAT2 do a good job to reproduce high concentration of ice crystals at low temperatures in terms of relative difference with observations. However, Ni is substantially underestimated ($\sim 10 \text{ L}^{-1}$) at higher temperatures ($> -25^\circ\text{C}$). These low concentrations are linked to dry air intrusions simulated by these schemes for these flights in the mid to upper part of the clouds (see Figure 6a and 6b). NAT3 behaves similarly to NAT1 and NAT2 for high temperatures. However, at cold temperatures, Ni is strongly underestimated. ORI results are similar to NAT1, NAT2 and NAT3 but with a larger Ni underestimation. It simulates low concentration of ice crystals ($\sim 30 \text{ L}^{-1}$) even at the coldest temperature.

The observed and simulated co-variabilities between Ni and Si for F12 & F13 are presented in the figure 2.15, 2.16, 2.17, 2.18 and 2.19. Observations (ISDAC) showed an increase of Ni when Si increases. Although the IN concentration in NAT2 and NAT3 depends on Si , results did not showed clear relationship between Ni and Si . Results

obtained with NAT1, which depends on TT , do not show any relationships either between Ni and Si . The co-variability between Ni and Si is however very well simulated by NAC and ORI. However, ORI clearly underestimates Ni for all Si values. It should be noted that the Ni underestimation of NAT1, NAT2 and NAT3 are moderately linked to Si with correlation coefficient varying between -0.40 and -0.30 (see Figures A.2). This indicates that the ice nucleation rate is likely to be too low at large values of Si . This relationship between Ni difference between NAC and observations is not present, thus indicating the ability of this scheme to simulate the large Ni concentrations at large values of Si .

The NAC formulation is based on the classical nucleation theory (CNT). The temperature dependence of the nucleation rate by deposition in the CNT is relatively small. The nucleation rate is proportional to $\exp(-1/T^3)$ (Pruppacher and Klett, 1997). The critical Gibbs free energy required for the formation of an ice embryo increases as the temperature decreases. Therefore, the nucleation rate should decrease when temperature decreases. This is not what NAC and the observations showed for the co-variability between Ni and TT . Indeed, this small relationship between Ni and TT is rather due to the fact that at colder temperatures, Si can reach higher values before the air becomes saturated to liquid water. Since (1) the nucleation rate by deposition strongly depends on Si and (2) Si can reach higher values when the temperature decreases, one would expect to see Ni increases when Si increases and TT decreases. This is well captured by NAC but not by ORI and all NAT, in which the dependence of the nucleation rate on Si did not seemed strong enough in the empirical relationship for these two ice clouds.

2.6.2.1.2. Modeled vs observed Ni and Ri

The co-variability between simulated and observed Ni for F12 and F13 are presented in the figure 2.20 to 2.24. If the simulation were perfect, every point on this plot would be located on the 1:1 line. The root mean square errors, relative errors and biases are shown in Table 2.3 for each scheme for the F12 and F13 ice clouds.

Most of the schemes have a negligible bias with a mean relative error well below the measurement uncertainties (50%) except for ORI and NAT3, which have large negative biases. NAT1 and NAT2 do a good job but NAC better reproduces smaller Ni ($< 100 \text{ L}^{-1}$) when compared to the NAT schemes. ORI systematically underestimates Ni with

values ranging between 10 and 50 L^{-1} . This scheme does not reproduce large Ni values. One may hypothesize that the Ni underestimation could be related to Si negative anomalies since the Meyers et al. (1992) parameterization is a function of Si . Figure 25 shows that this Ni underestimation is not linked to Si anomalies. Ni anomalies are negative whatever the sign of the Si anomalies. The Ni underestimation seemed to be related to the fact that it is limited to maximum values given by the Meyers et al. (1992) empirical relationship for a given Si . This approach does not seem appropriate for the simulation of the TIC-1 clouds observed during F12 and F13.

The co-variability between simulated and observed R_i during F12 and F13 are presented in figure 2.26, 2.27 and 2.28. All schemes overestimated the ice crystal mean radius. NAC have a smaller bias, RE and RMS when compared to the other schemes. R_i depends on the ice water content and number concentration of ice crystals Ni . In NAC and NAT, the ice water content is overestimated (not shown). While the number concentration of ice crystals is well reproduced, the ice crystal mean radius is overestimated. In ORI, the overestimation of R_i is not related to the ice water content but rather to a strong underestimation of Ni .

2.6.2.2. TIC-2 clouds F21 and F29

2.6.2.2.1. Co-variability of Ni with TT and Si

The observed and simulated co-variability between Ni and TT for F21 and F29 are presented in the figure 2.29 and 2.30. As opposed to the two TIC-1 clouds investigated in the previous section, observations show no relationship between Ni and TT in these two TIC-2 clouds. Both AC and ORI show an increase of Ni with TT with a correlation coefficient of 0.85 and 0.63 respectively. While AC simulates pretty well Ni at cold temperatures (in the upper portion of the ice clouds), Ni is overestimated at warmer temperatures representative of the lower part of the clouds. ORI overestimates Ni at all temperatures.

The observed and simulated co-variability between Ni and Si for F21 and F29 are presented in the figure 2.31 and 2.32. As opposed to the TIC-1 clouds, observations show no relationship between Ni and Si in these TIC-2 clouds. The smallest Ni values are even

found at high Si values. In ORI, Ni and Si are highly correlated ($r=0.65$) with the largest Ni values at the largest Si values. AC behaves differently with the lowest Ni values at the largest Si values similar to the observations. However, AC overestimates Ni at $Si \sim 1$, that is in the lower portion of the clouds where a Ni overestimation was previously found at temperatures warmer than -25°C (Figure 5a and 5b).

One may wonder why Ni varies with Si in TIC-1 clouds and not in TIC-2 clouds. Figure 2.33 shows the shape of the curve for the exponential part of the nucleation rate equation (equation 2.1). The curves in blue and red representing the nucleation rate assuming a contact angle of 12° and 26° . It can be seen that for a given Si , the slope dJ/dSi is much larger for the smallest contact angle. As a result, the CNT suggests a much stronger relationship between Ni and Si in TIC-1 and a weaker relationship in TIC-2. This is in agreement with the observations of the TIC-1 and TIC-2 clouds investigated in this study. As opposed to the empirical relationship used in ORI, the CNT used with different contact angles (NAC and AC) is able to better reproduce the relationship of Ni with Si for both types of clouds (TIC-1 and TIC-2) when compared to the ORI scheme.

2.6.2.2.2. Modeled vs observed Ni and Ri

The co-variability between simulated and observed Ni during F21 and F29 is presented in the figure 2.34. Both AC and ORI have a positive bias of $\sim 10 \text{ L}^{-1}$ and a mean relative error of $\sim 65\%$. AC better reproduces the smaller Ni ($< 15 \text{ L}^{-1}$) when compared to ORI, which does not produce any concentrations below $\sim 14 \text{ L}^{-1}$. On the other hand, the larger Ni values are better reproduced by ORI when compared to AC. Overall, ORI and AC simulations are very similar in terms of RMS, RE and bias. However, near cloud top, in the nucleation portion of the clouds where Ni is relatively small, AC better captures the observed Ni . Even though RE is significant for both schemes (AC and ORI), the absolute value of the biases are small and the simulated Ni remains in the same order of magnitude of the observed Ni .

The co-variability of simulated and observed Ri during F21 and F29 is presented in figure 2.35. Both schemes underestimate Ri throughout the clouds. This is consistent with the overestimation of Ni in both schemes. ORI and AC have similar biases, RE, and RMS with values of $\sim -35 \text{ L}^{-1}$, $\sim -30\%$ and $\sim 40 \text{ L}^{-1}$ respectively.

2.7. Summary and conclusion

In this study, new parametrizations for heterogenous ice nucleation in the deposition and immersion modes are implemented into the two-moment microphysics scheme of the Canadian Global Environmental Multiscale (GEM) model in order to reproduce Thin Ice Clouds observed during ISDAC in April 2008. The implemented parameterizations are based on recent laboratory studies and developed according to two approaches: stochastic in which the nucleation is hypothesized to be time dependent and singular in which the nucleation occurs at a specific temperature or ice supersaturation and is time independent. The main objective of the study was to determine which of these parameterizations can be used to reproduce the formation of Arctic ice cloud in polluted and pristine air masses. The results are also compared with the original ice nucleation parameterization in the model, which is based on the empirical relationship of Meyers et al. (1992).

ISDAC observations showed that clouds formed during pristine air event (F12 & F13) are composed by a large concentration of small ice crystals (TIC-1) (Jouan et al, 2012). NAC and, to a lesser extent, all NAT do a better job at reproducing TIC-1 observed during F12 and F13 while they strongly overestimate N_i observed in the TIC-2s during F21 and F29. These results were expected since NAC and all NAT were developed to simulate ice nucleation on either uncoated *IN* (NAT2 and NAT3) or on *IN* coated with pure water (NAT1). With NAC, lower contact angles of uncoated *IN* leads to higher nucleation rates, which explain the high concentration of ice crystal in TIC-1. The large amount of ice crystals being nucleated limits the saturation over ice to relatively small values. Those low S_i values, limit the growth of ice crystal, which lead to smaller ice crystal ($\sim 30 \mu\text{m}$). The contact angles θ used in NAC leads to a more progressive pattern in ice nucleation. It allows the model to better simulate small concentration of ice crystals found in the lower layers of TIC-1s. ORI has difficulty to reproduce the high concentration of ice crystals observed during these two flights. Although better than ORI, the three tested parameterizations based on the singular approach (NAT1, NAT2, NAT3) tend to underestimate N_i much more when compared to NAC.

The observations also showed that clouds formed during polluted air event (F21 and F29) are composed of a low concentration of large ice crystals (TIC-2) (Jouan et al, 2012). AC and ORI do a better job at reproducing TIC-2s observed during F21 and F29

while they substantially underestimate N_i in TIC-1s during F12 and F13. We expected AC to behave this way since the scheme is designed to simulate ice nucleation on acid-coated IN . According to Jouan et al. (2013), the aerosols during F21 were most likely to be highly acidic. The higher contact angle of the acid coated IN leads to relatively low nucleation rates, which explain the small ice crystal concentration in TIC-2. This altered nucleation process allows the saturation over ice to reach much higher values before any crystal are being nucleated. This high saturation also leads to the explosive growth of ice crystals by water vapour deposition with sizes of $\sim 10^2$ μm . Even though ORI is not developed to reproduce ice nucleation on acid-coated IN , it simulates reasonably well the two TIC-2 investigated in this study with results very similar to AC.

Overall results suggest that the stochastic approach based on the CNT (NAC and AC) with a single contact angle (Eastwood et al., 2008; 2009) remains the best to simulate the four ice clouds investigated in this paper. Not only the ice crystal concentration remains within the uncertainty range of observed values, but the observed co-variability between N_i and S_i on one hand and N_i and TT on the other hand are reasonably well reproduced. In this investigation, few clouds were simulated. NAC and AC will have to be evaluated against other observations of Arctic ice clouds to either confirm or infirm these results. The newly developed algorithms can be coupled with a chemistry transport model and use the predicted chemical composition of IN to choose the right contact angle (AC or NAC).

[Cette page a été laissée intentionnellement blanche]

FIGURES

2.1 The information ISDAC's flights. Four different clouds were observed during these flights, F12, F13, F21 and F29.

Flight #	Date	Time Profile	Location - Coordinates	Air Mass
F12	April 5 th , 2008	01:15:35 01:34:05	- Barrow - (203.364 ; 71.286)	Pristine
F13	April 5 th , 2008	20:35:26 21:00:05	- Barrow - (203.213 ; 71.259)	Pristine
F21	April 15 th , 2008	00:55:40 01:17:24	- Barrow - (203.201 ; 71.334)	Polluted
F29	April 29 th , 2008	04:08:22 04:27:51	- Fairbanks - (208,329 ; 64.727)	Polluted

2.2 The six ice nucleation parameterization used for our simulations. Note that ORI does not consider the *IN* to be coated or uncoated, hence the lack of a contact angle. Ice nucleation is derived from a empirical relationship (Meyers et al, 1992).

*For the NAT1 cases the dust samples come from deferent regions such as Asia, Sahara, Israel, Arizona and Canary Island.

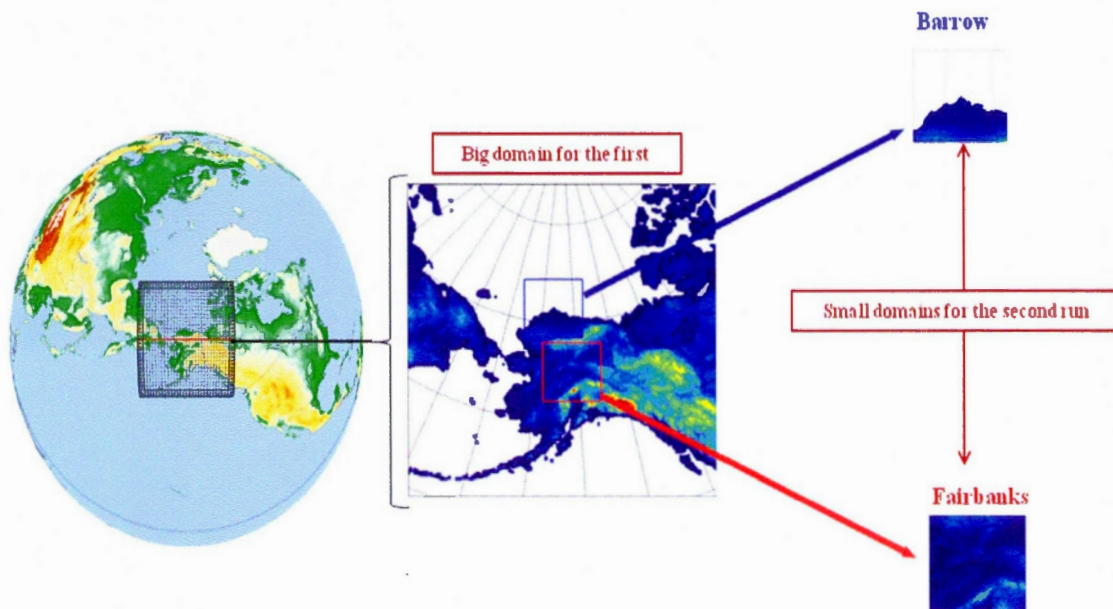
Scheme Version	Author	Specie	Ice nuclei state	Ice nuclei contact angle
NAT1	Niemand et al, 2012	Dust*	Coated	-----
NAT2	Wheeler et al, 2012	Illite	Uncoated	-----
NAT3	Wheeler et al, 2012	Kaolinite	Uncoated	-----
NAC	Eastwood et al, 2008	Kaolinite	Uncoated	$\theta = 12^\circ$
AC	Eastwood et al, 2009	Kaolinite	Coated	$\theta = 26^\circ$
ORI	Meyer et al, 1992	-----	-----	-----

2.3 The co-variability between simulated and observed Ni and Ri. Pristine Air Masses cases.

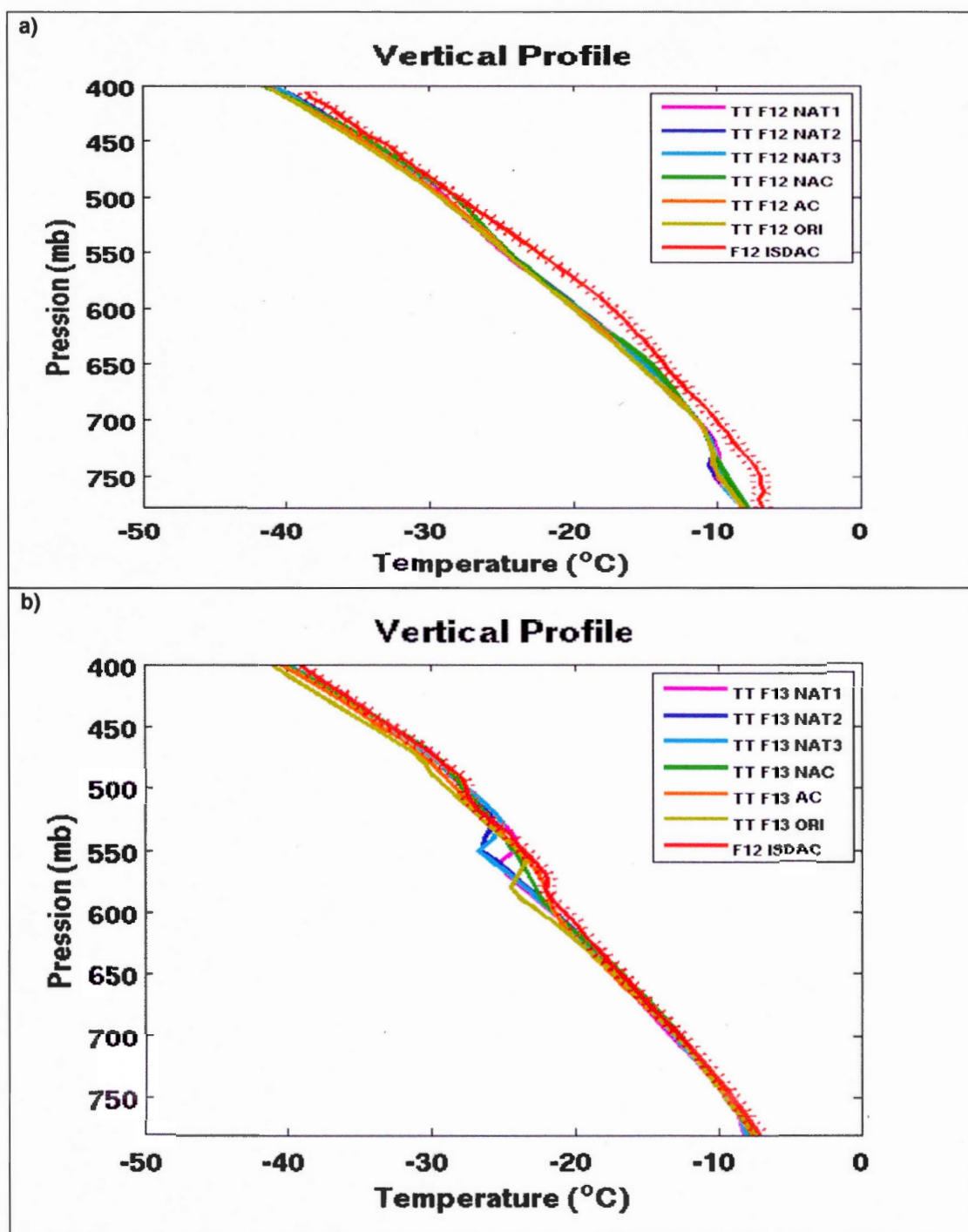
Variable	Scheme Version	RMS	RE (%)	Bias
Ni	NAT1	546.45	-39.24	-79.63
	NAT2	525.59	-30.32	-61.53
	NAT3	-358.54	-37.62	-76.33
	NAC	363.82	19.68	-39.94
	ORI	429.69	-92.57	-187.82
Ri	NAT1	45.70	131.52	40.22
	NAT2	46.18	131.20	40.13
	NAT3	40.55	103.74	31.73
	NAC	17.69	40.38	12.30
	ORI	31.55	96.70	29.57

2.4 The co-variability between simulated and observed Ni and Ri. Highly Acidic Air Masses cases.

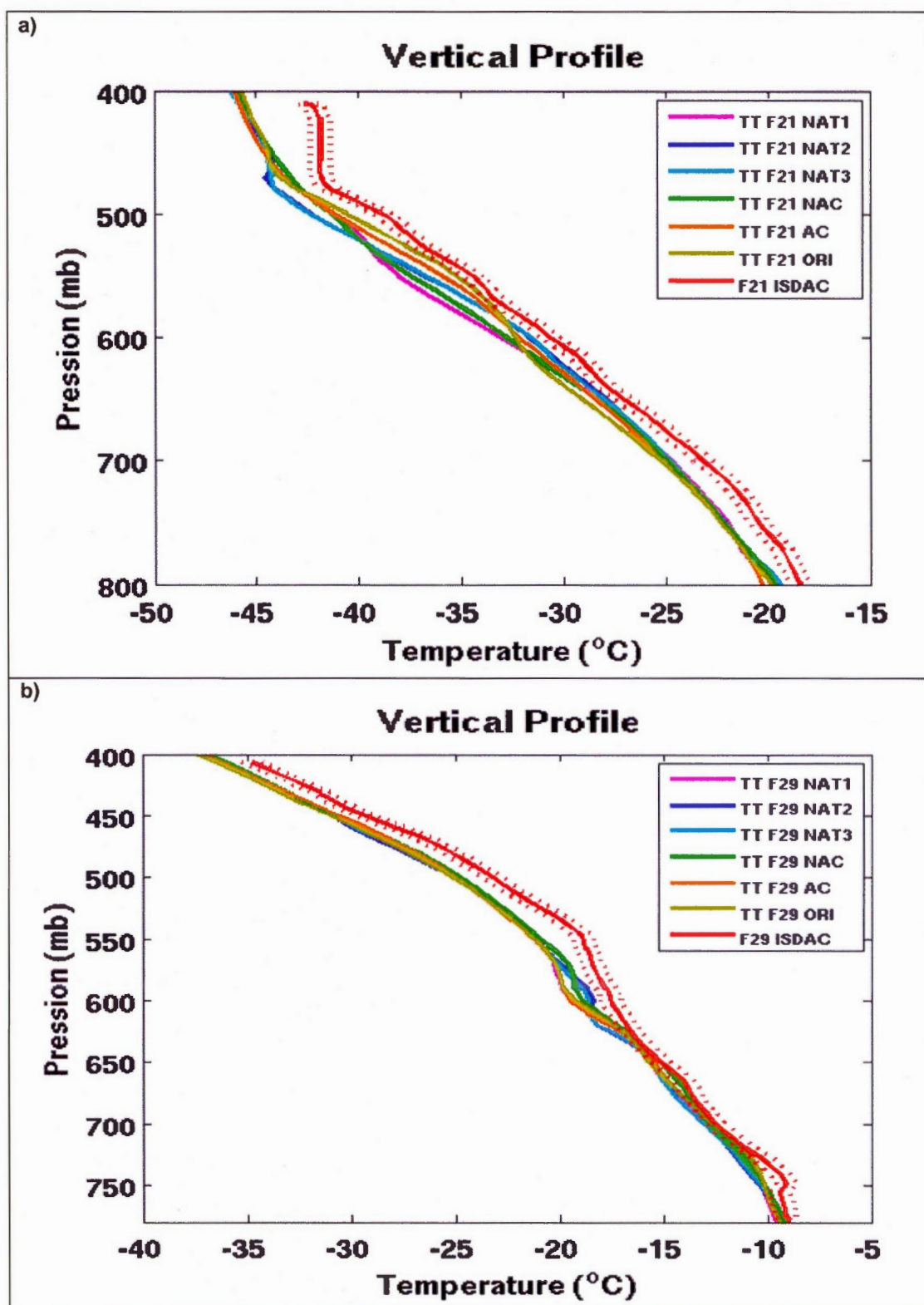
Variable	Scheme Version	RMS	RE (%)	Bias
Ni	AC	15.19	73.17	6.71
	ORI	9.93	64.58	5.92
Ri	AC	43.45	-34.52	-37.88
	ORI	38.59	-31.44	-31.56



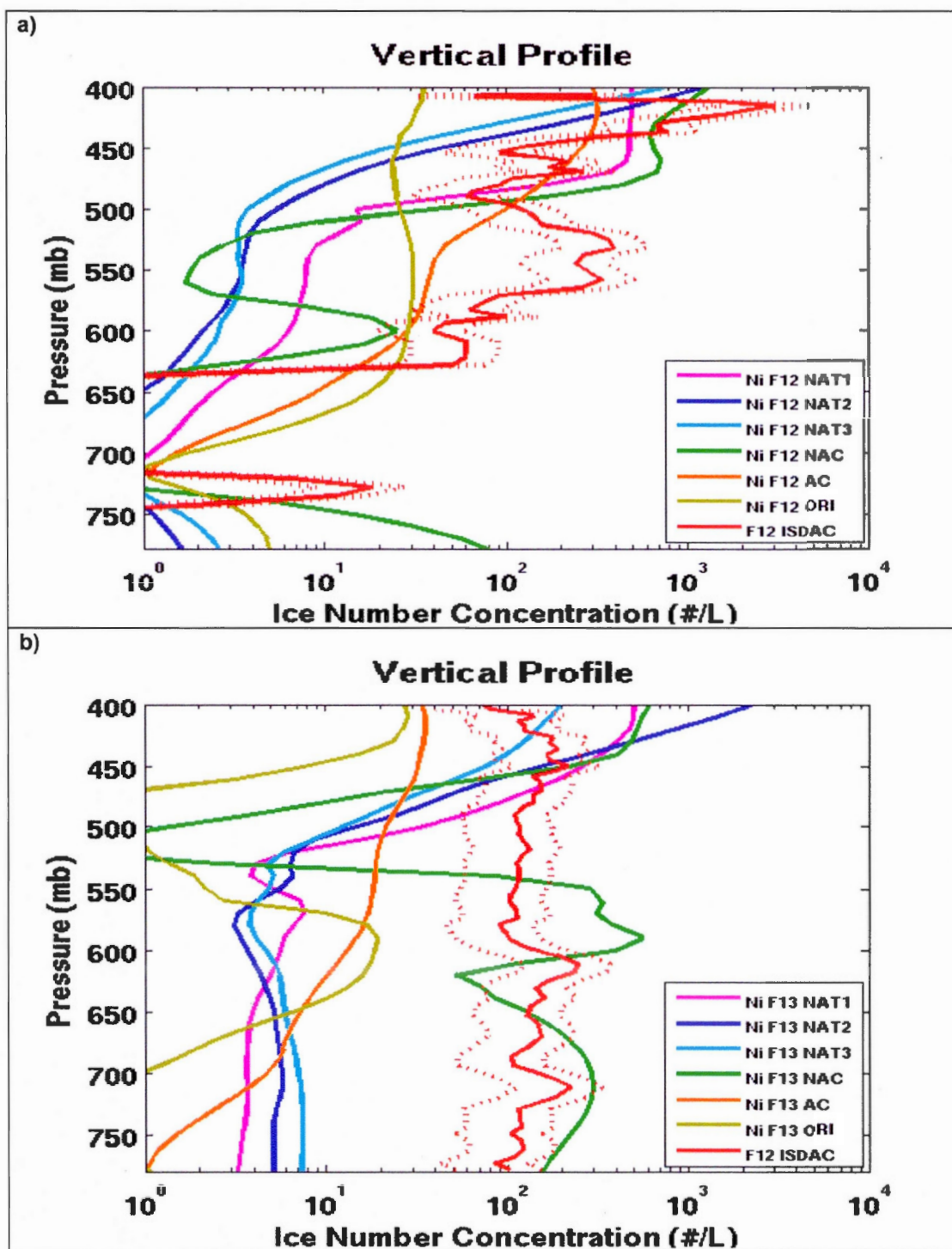
2.1 The large and small domains. Simulation is used to drive two inner smaller domains, one centered over Barrow and the other one over Fairbanks. These small domains have 240×240 grid points with a horizontal resolution of 2.5 km.



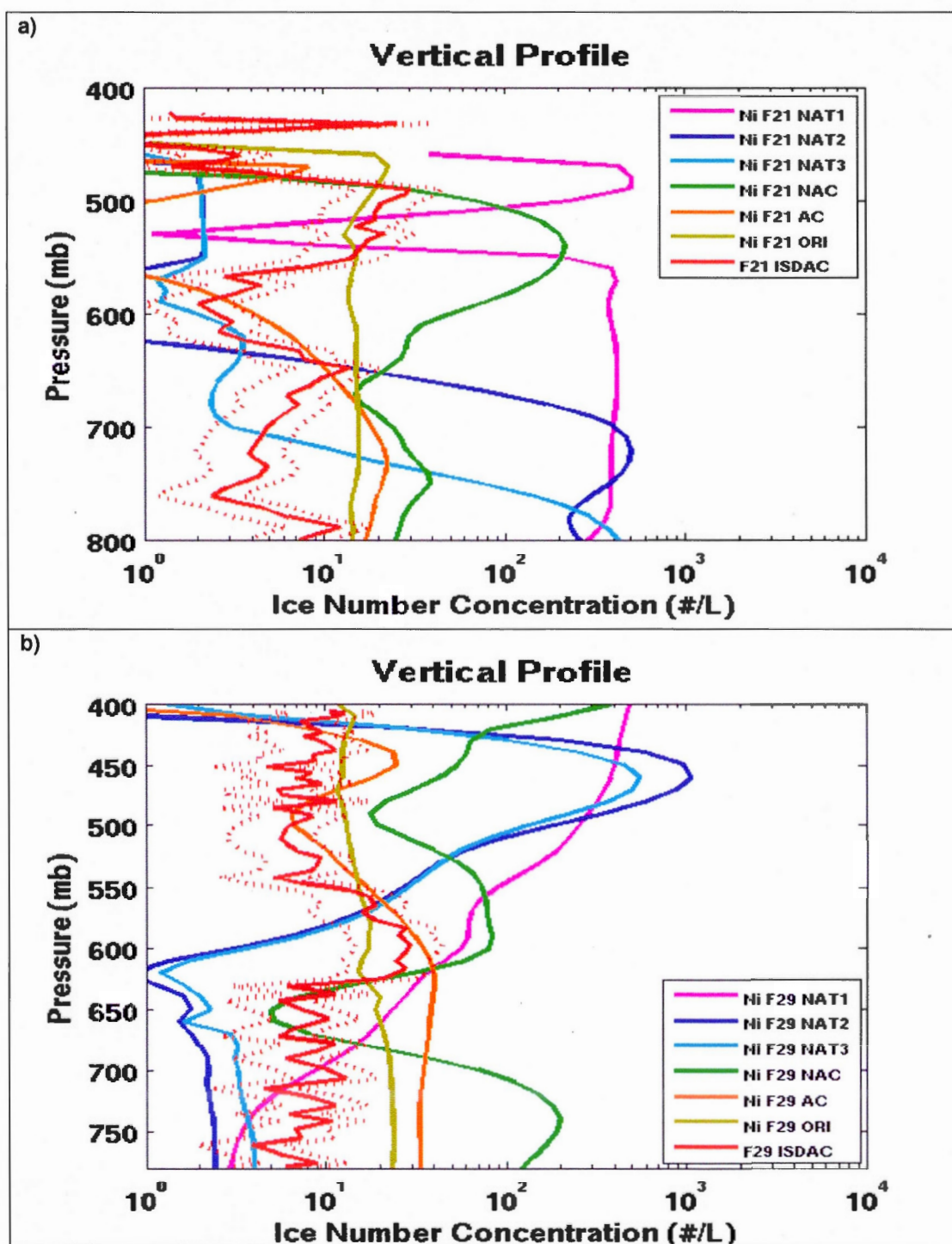
2.2 Comparison of the observed and simulated (NAT1, NAT2, NAT3, ORI, NAC and AC) vertical profiles of temperature (TT) for the flights F12 (a) and F13 (b). The red dash line represents the uncertainties on the measurements.



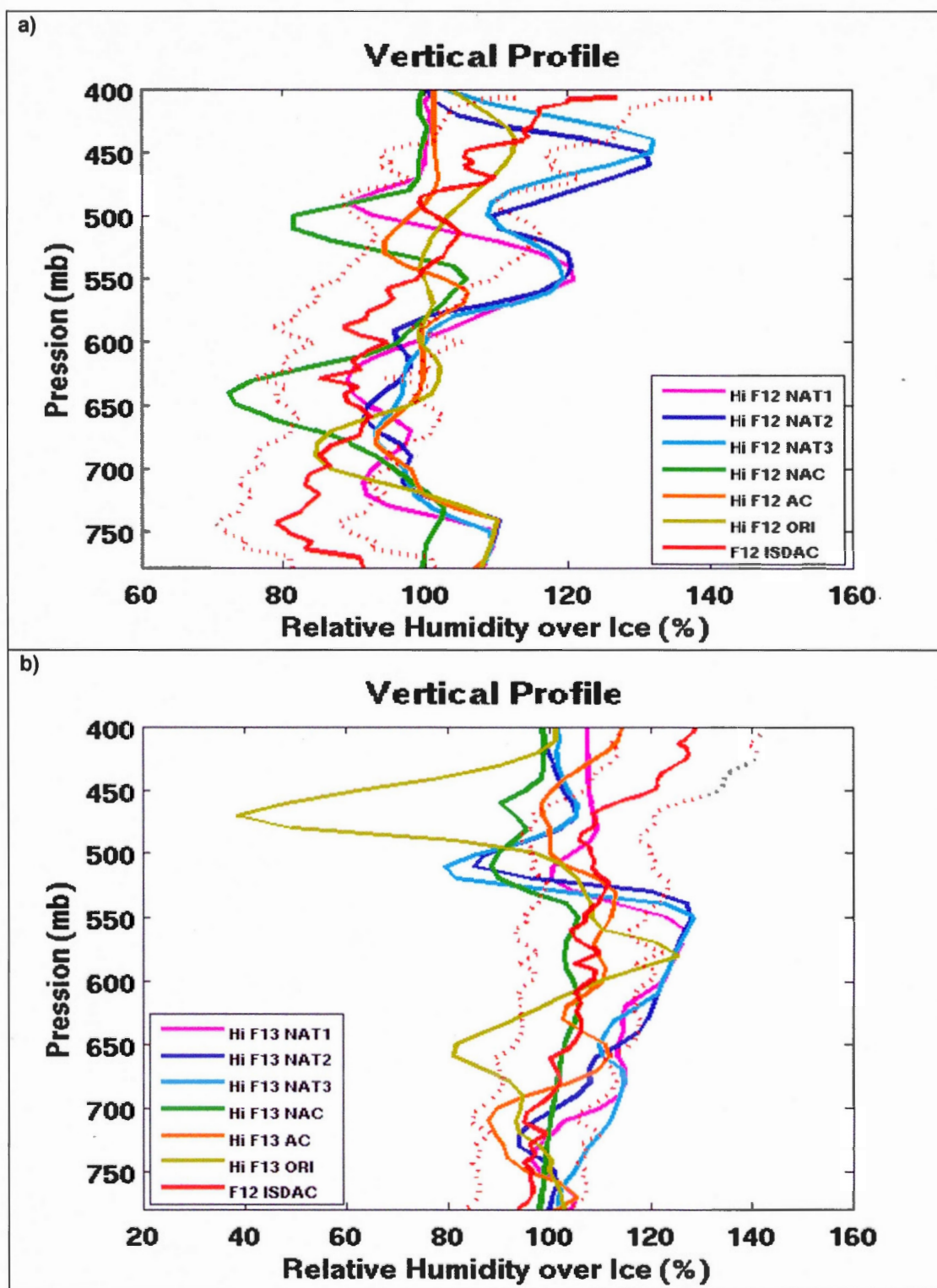
2.3 Comparison of the observed and simulated (NAT1, NAT2, NAT3, ORI, NAC and AC) vertical profiles of temperature (TT) for the flights F21 (a) and F29 (b). The red dash line represents the uncertainties on the measurements.



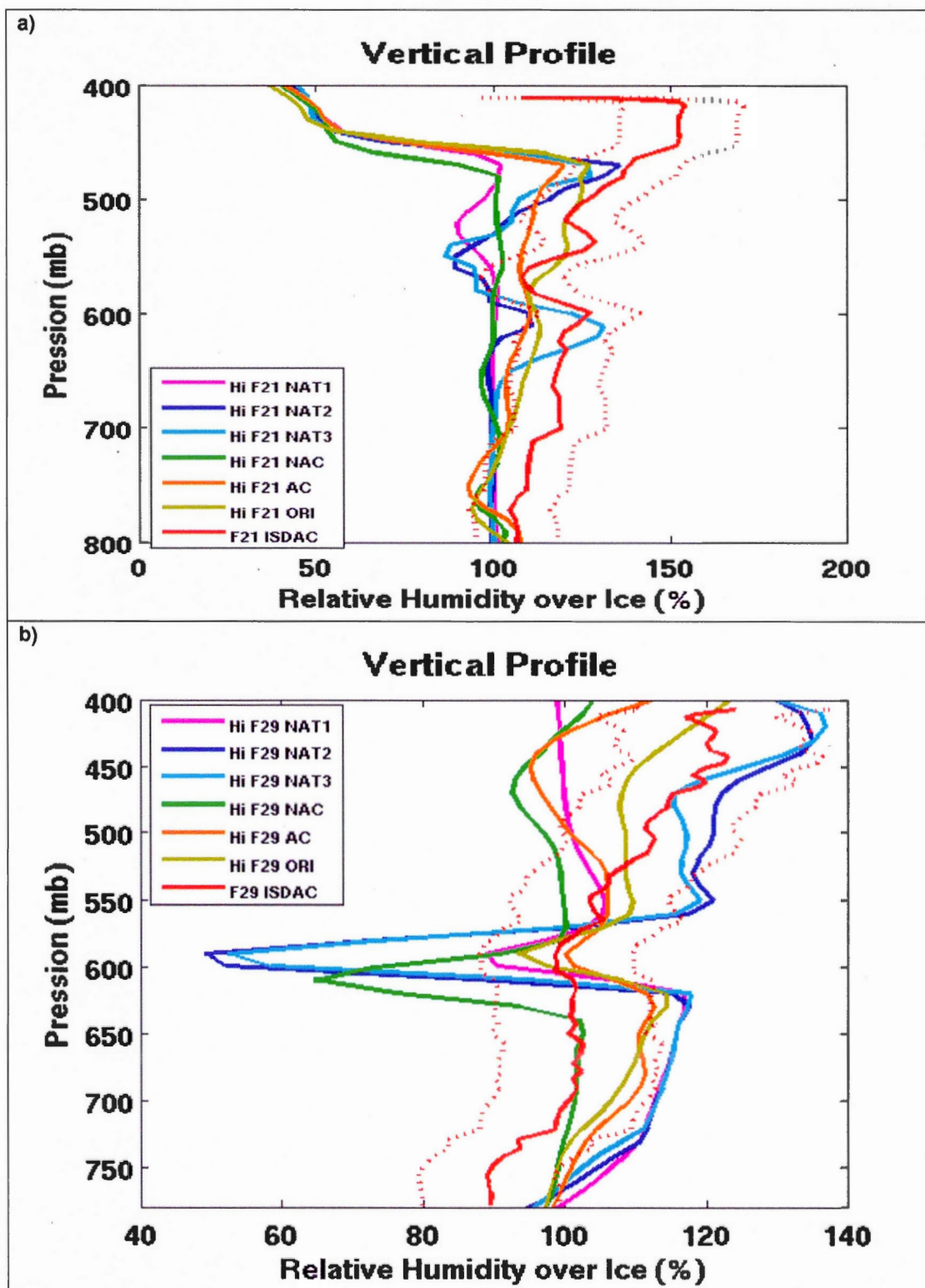
2.4 The observed and simulated vertical profile of the ice crystal number concentration for the F12 (a) and F13 (b) both TIC-1. The red dash line represents the uncertainties on the measurements.



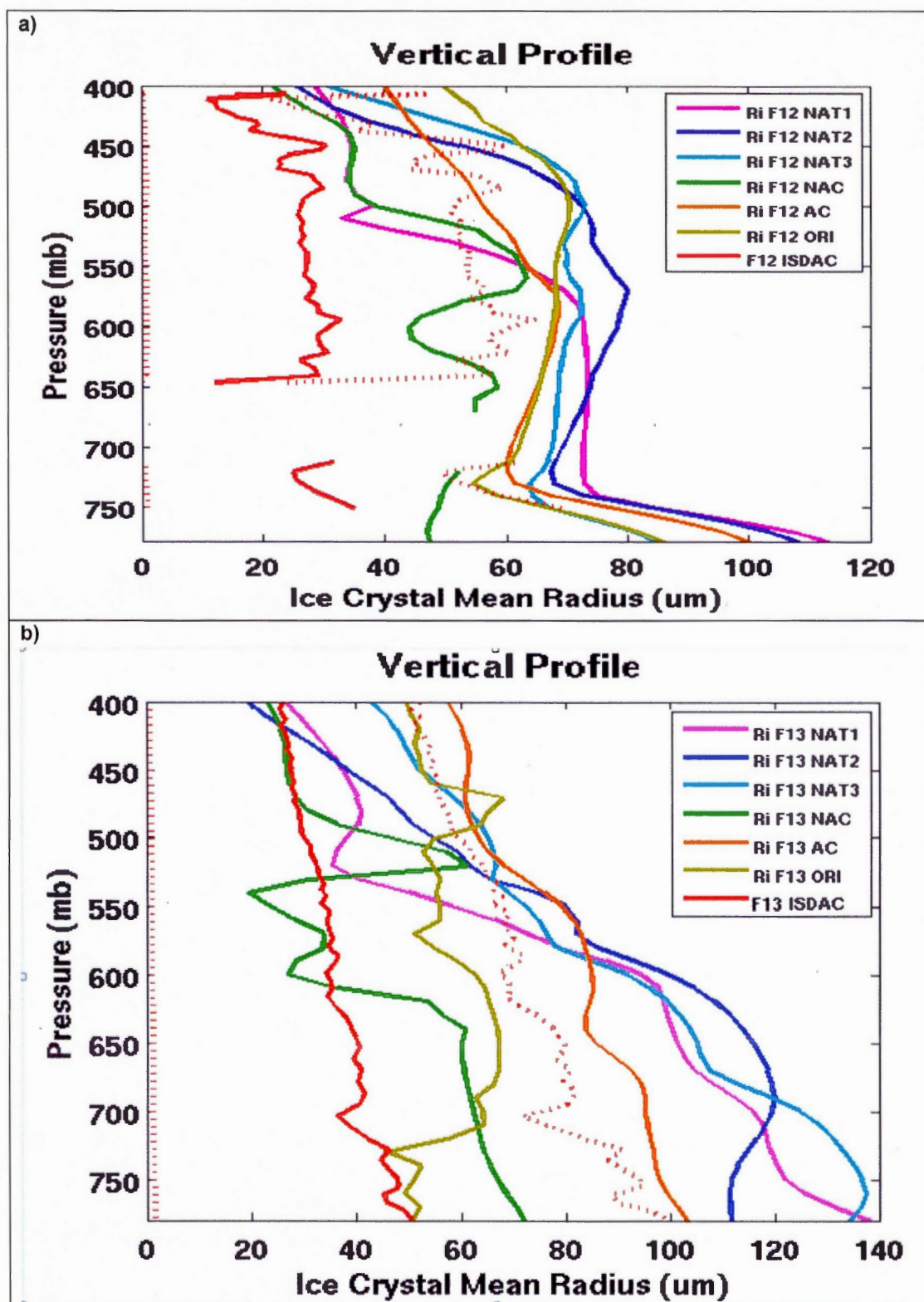
2.5 The observed and simulated vertical profile of the ice crystal number concentration for the F21 (a) and F29 (b) and both TIC-2B. The red dash line represents the uncertainties on the measurements.



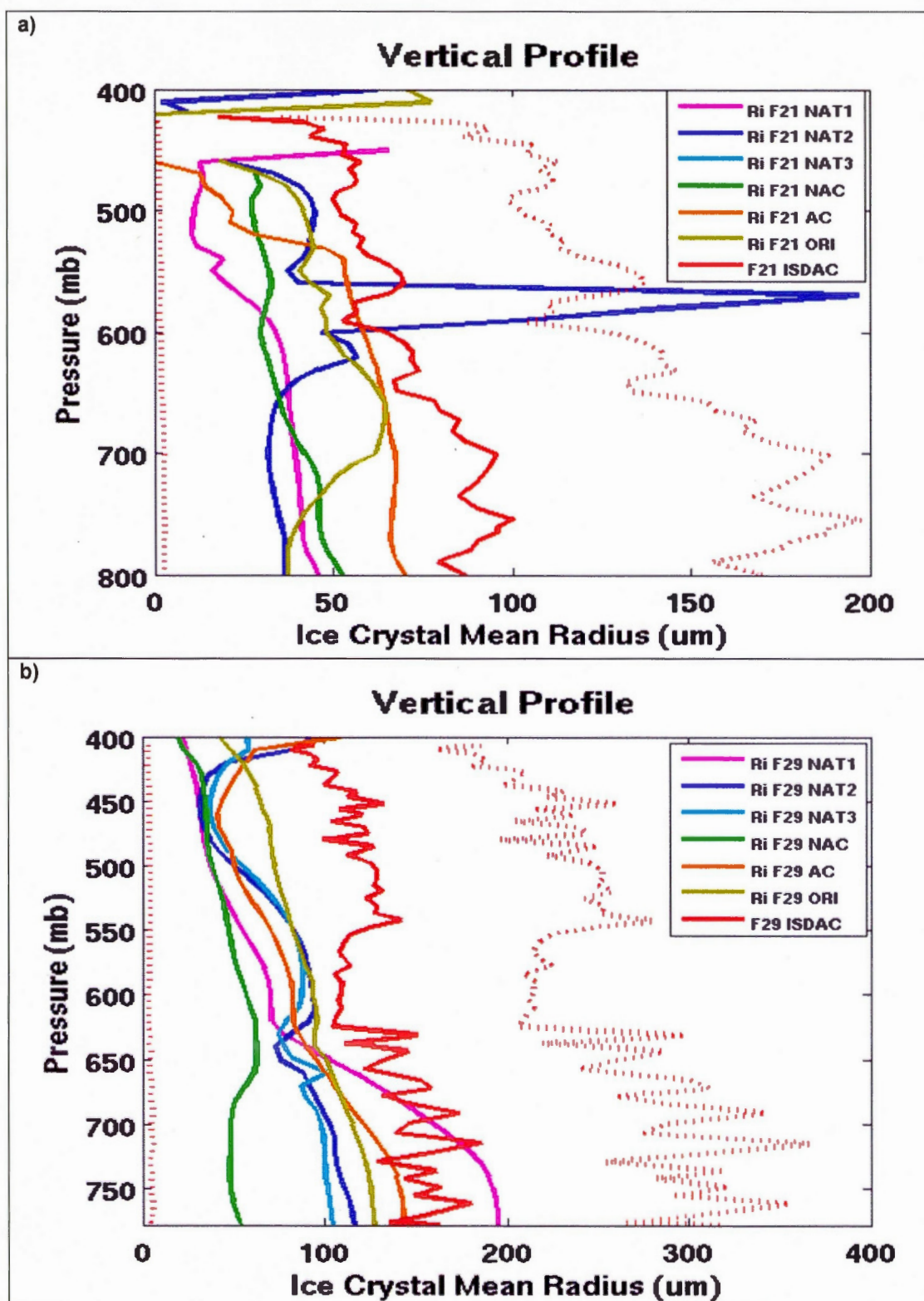
2.6 The vertical profiles of the relative humidity with respect to ice (H_{Ri}) simulated by GEM-LAM and observed during flight F12 (a) and F13 (b). The red dash line represents the uncertainties on the measurements.



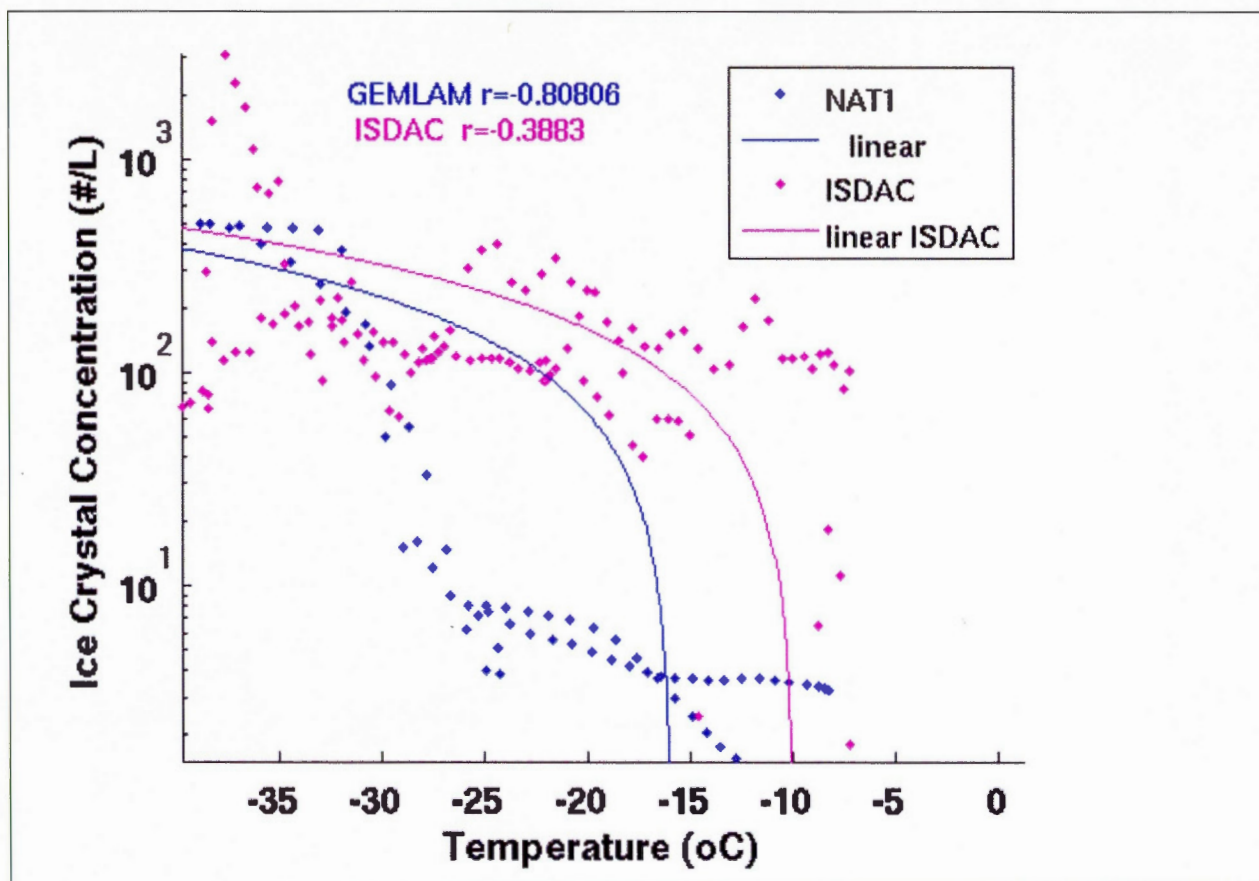
2.7 The vertical profiles of the relative humidity with respect to ice (HRI) simulated by GEM-LAM and observed during flight F21 (a) and F29 (b). The red dash line represents the uncertainties on the measurements.



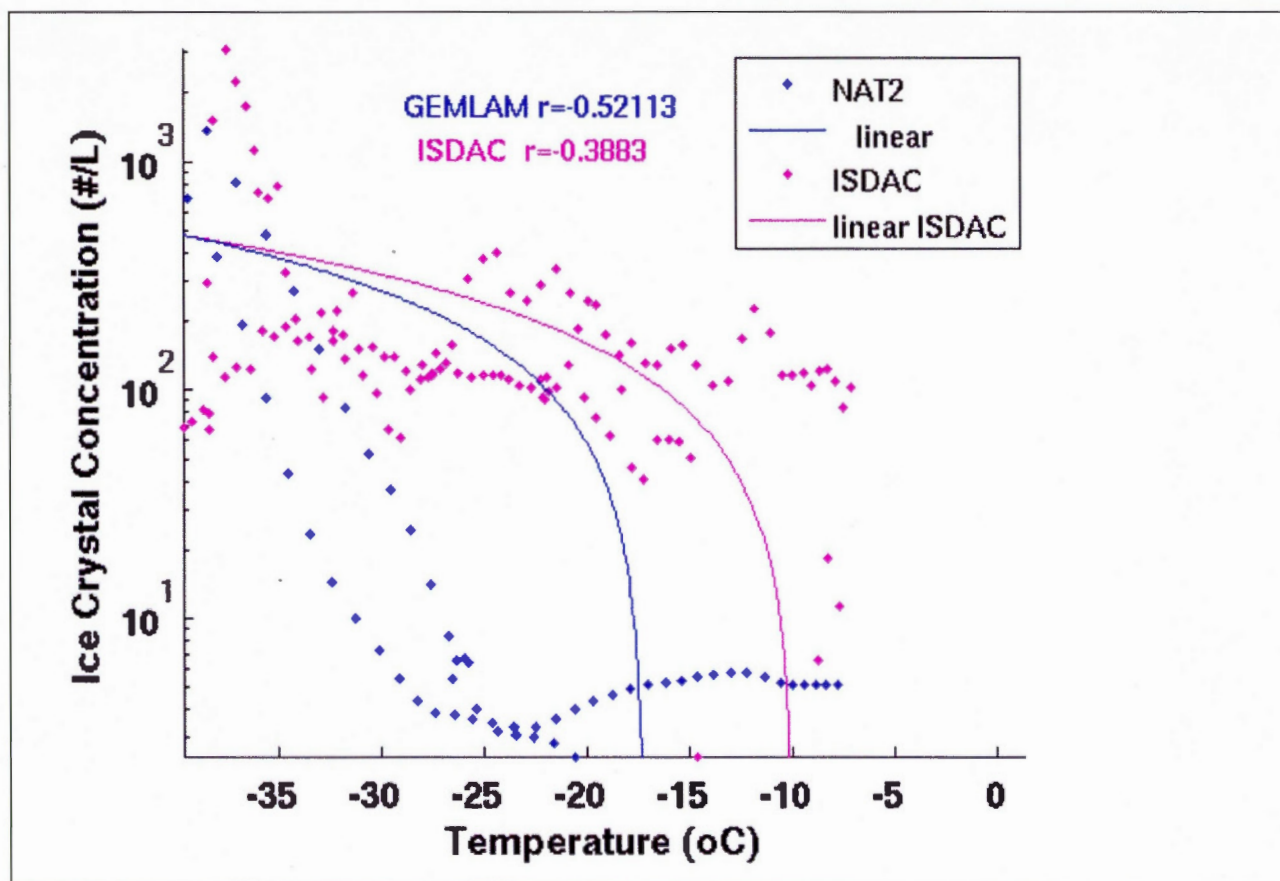
2.8 shows the observed and simulated vertical profiles of the cloud ice crystal mean radius during the flights F12 (a) and F13 (b). The red dash line represents the uncertainties on the measurements.



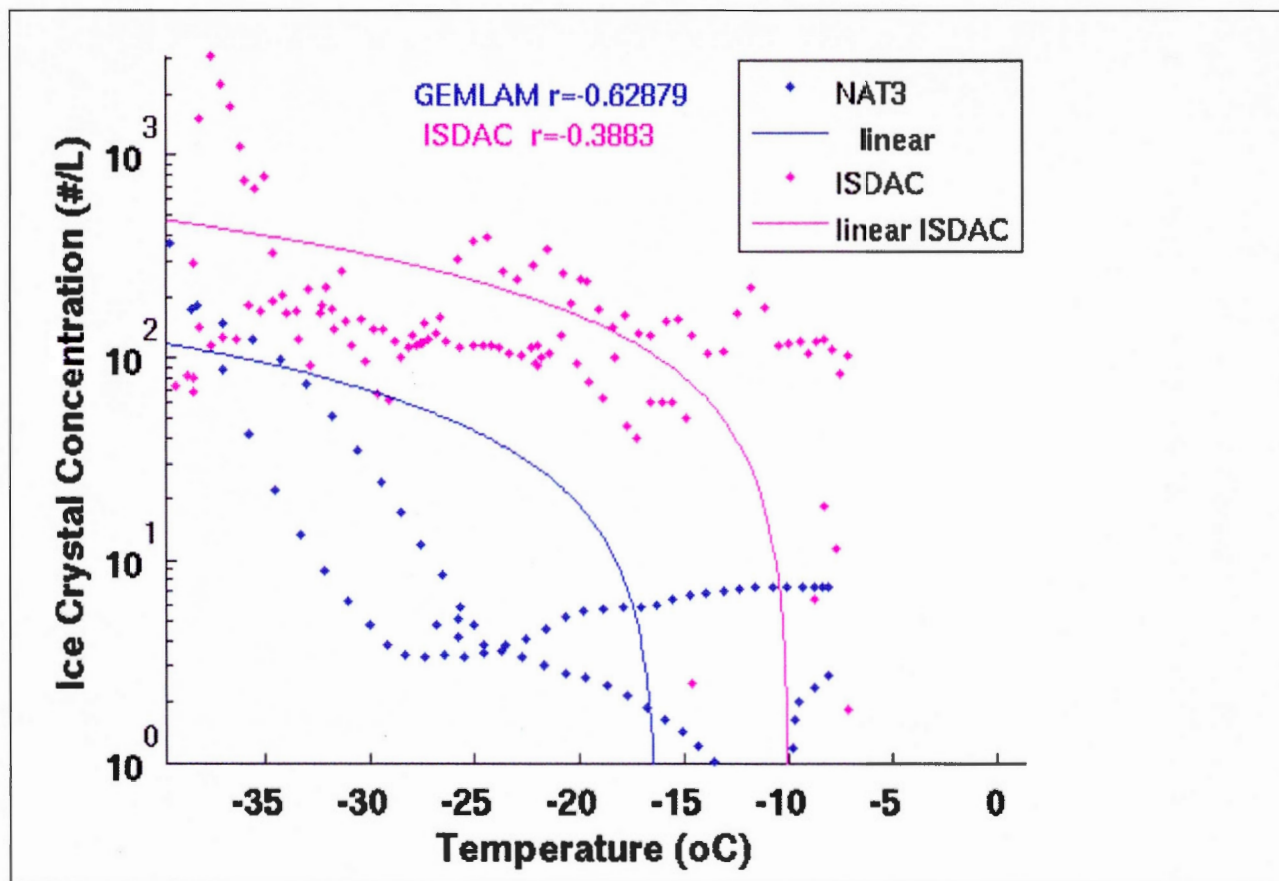
2.9 The observed and simulated vertical profiles of the cloud ice crystal mean radius during the flights F21 (a) and F29 (b). The red dash line represents the uncertainties on the measurements.



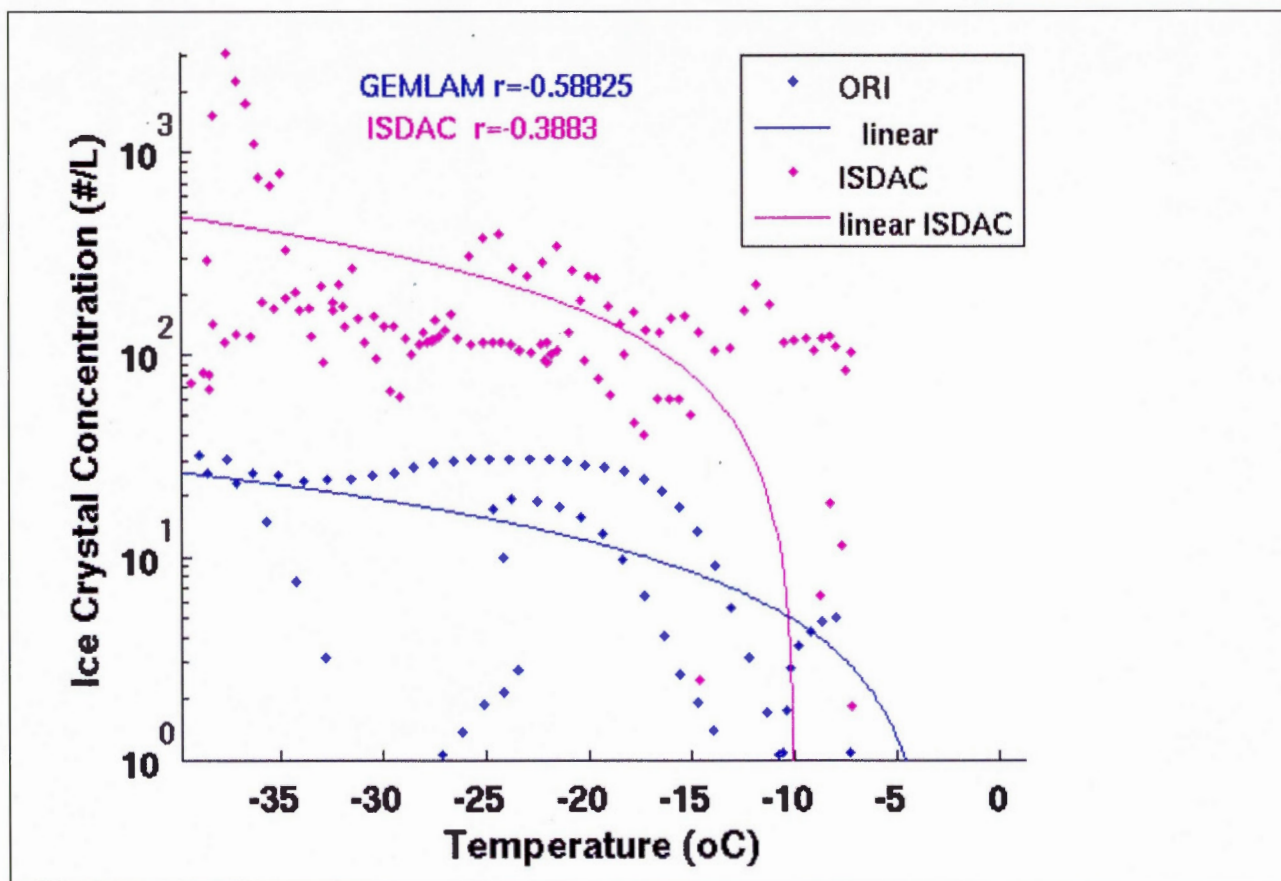
2.10 The simulated and observed co-variabilities between Ni and TT for flights F12 and F13 for NAT1 case.



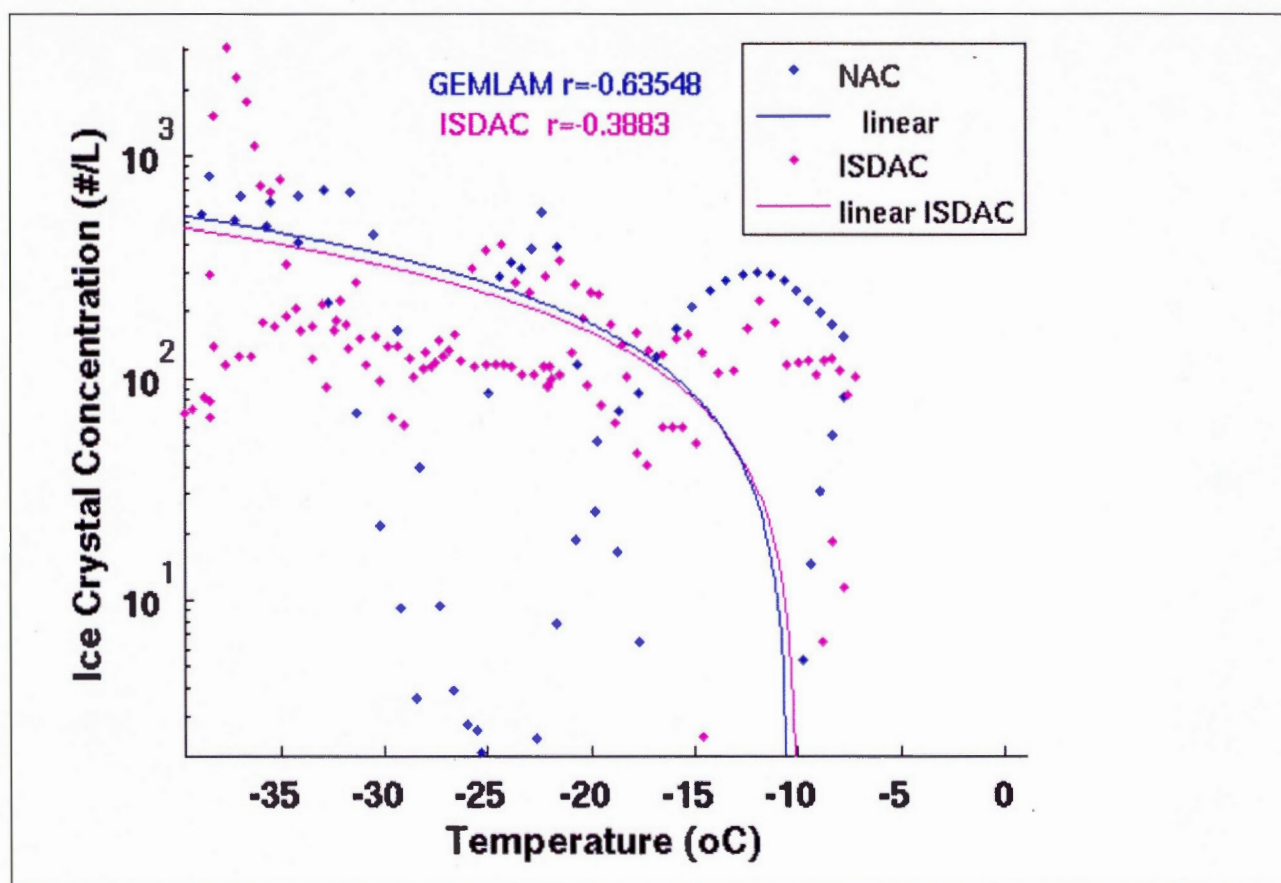
2.11 The simulated and observed co-variabilities between Ni and TT for flights F12 and F13 for NAT2 case.



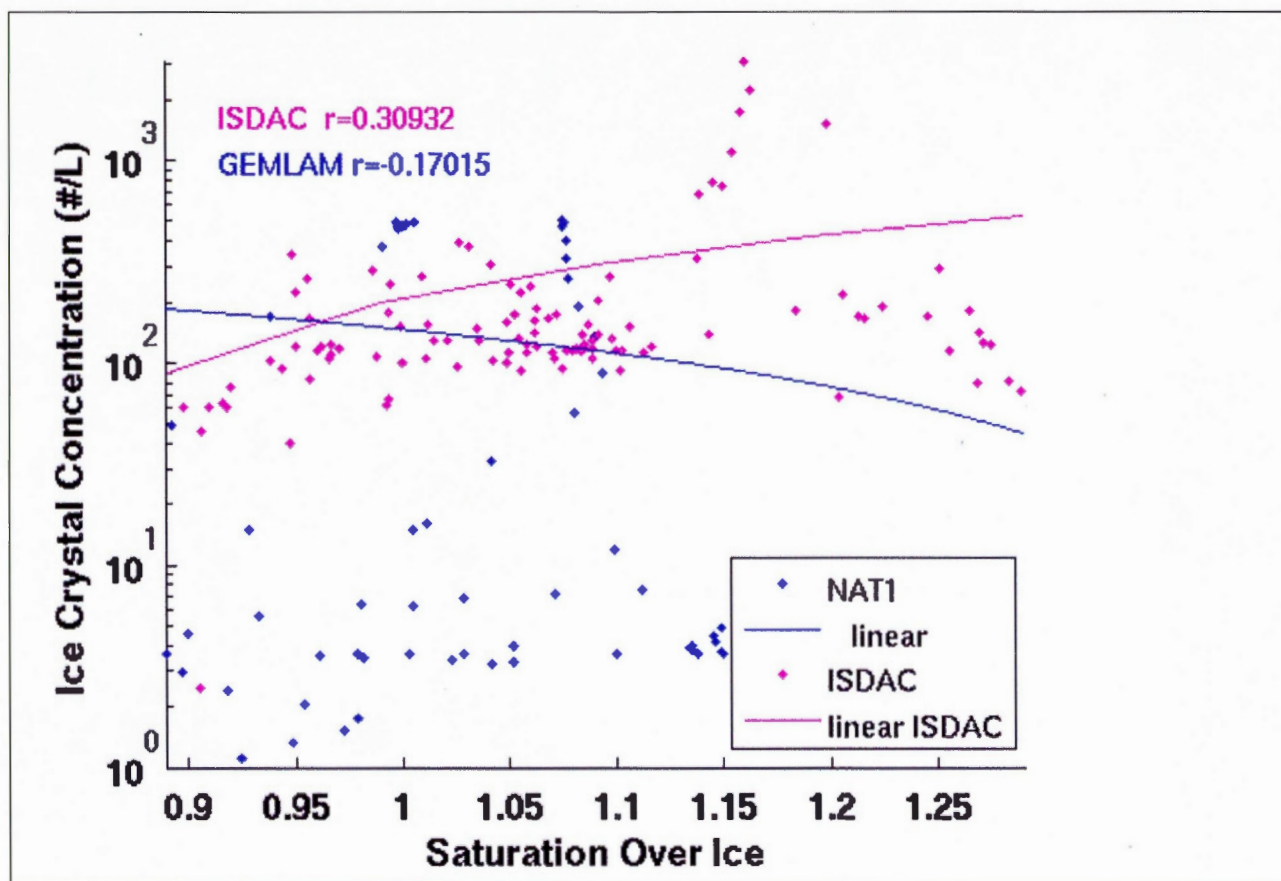
2.12 The simulated and observed co-variabilities between N_i and T_T for flights F12 and F13 for NAT2 case.



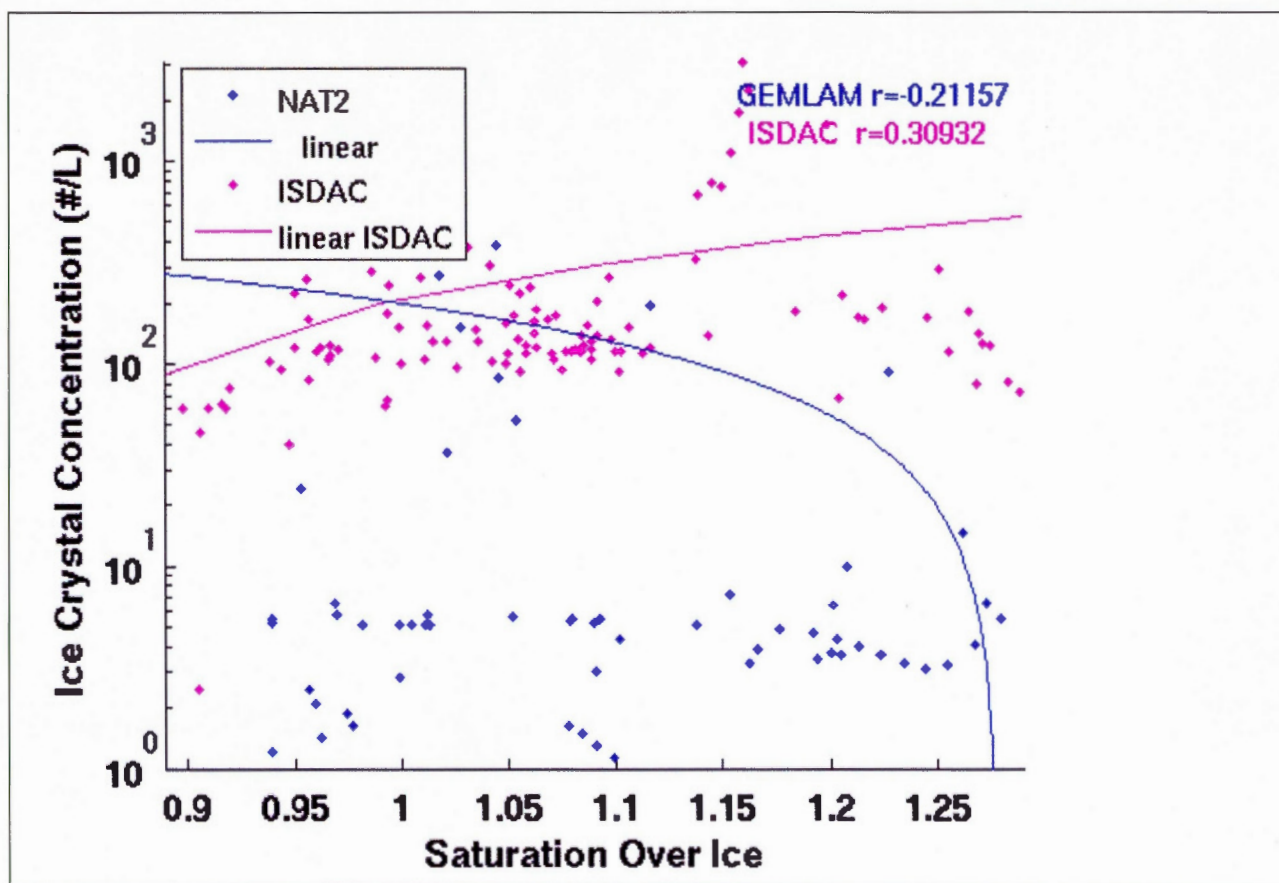
2.13 The simulated and observed co-variabilities between Ni and TT for flights F12 and F13 for ORI case.



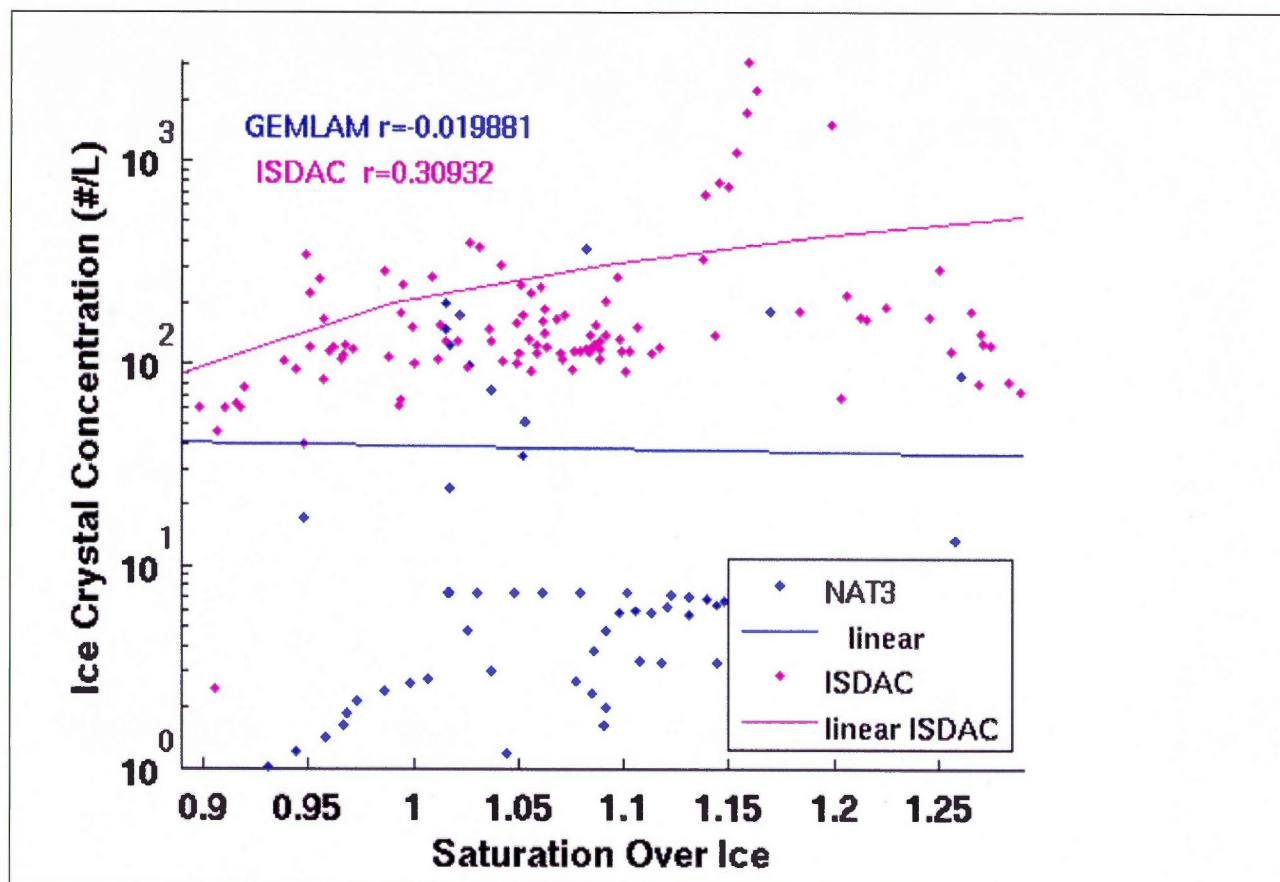
2.14 The simulated and observed co-variabilities between Ni and TT for flights F12 and F13 for NAC case.



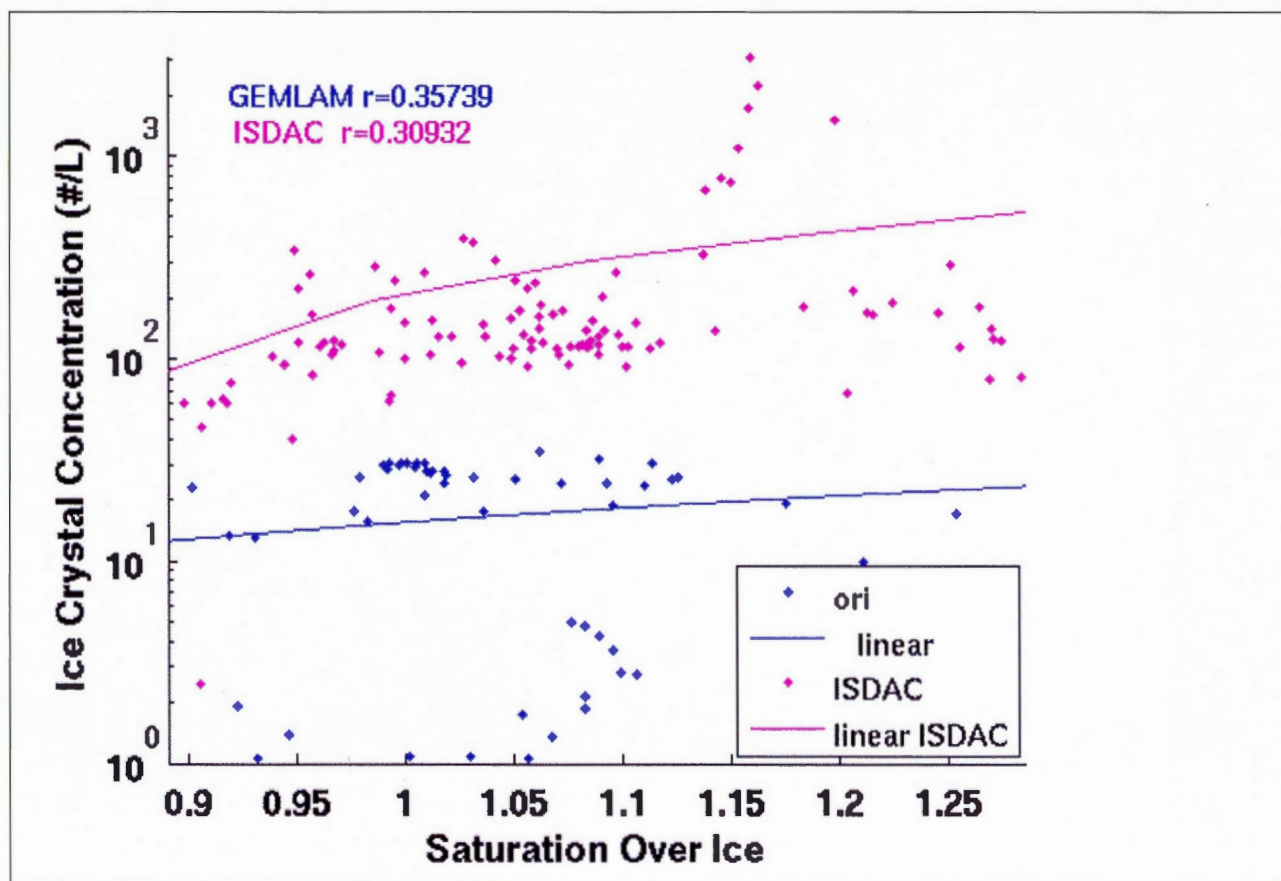
2.15 The observed and simulated co-variabilities between Ni and Si for the flights F12 & F13 for NAT1 case.



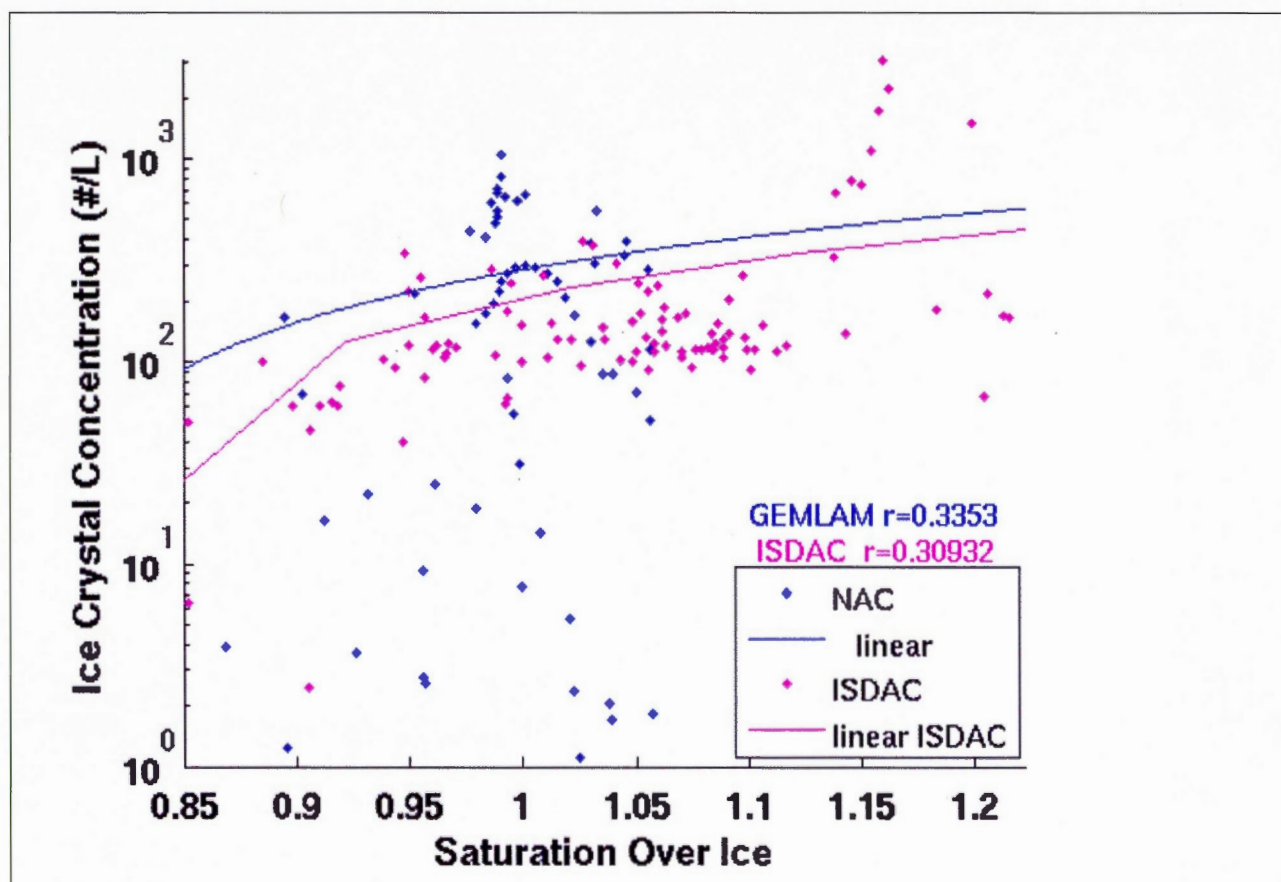
2.16 The observed and simulated co-variabilities between Ni and Si for the flights F12 & F13 for NAT2 case.



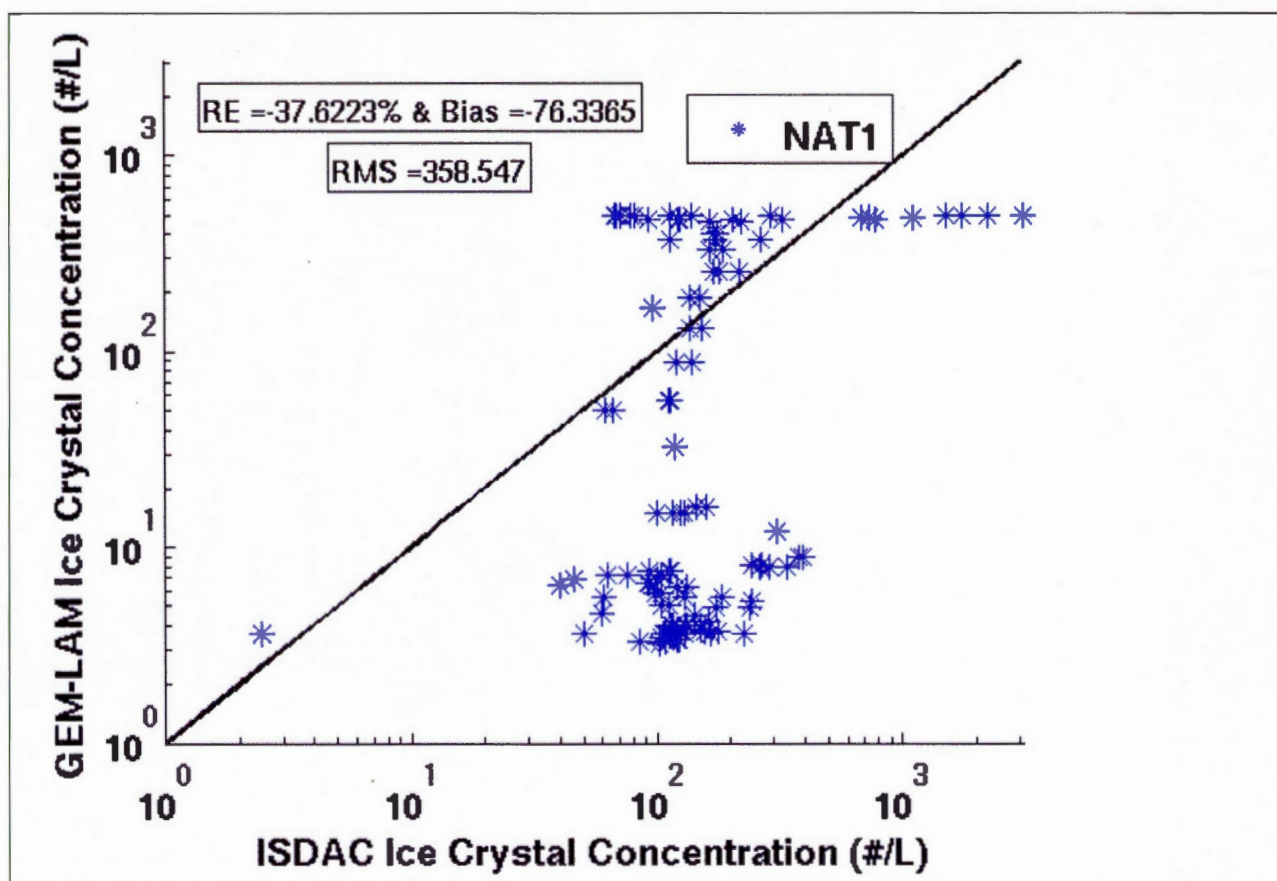
2.17 The observed and simulated co-variabilities between Ni and Si for the flights F12 & F13 for NAT3 case.



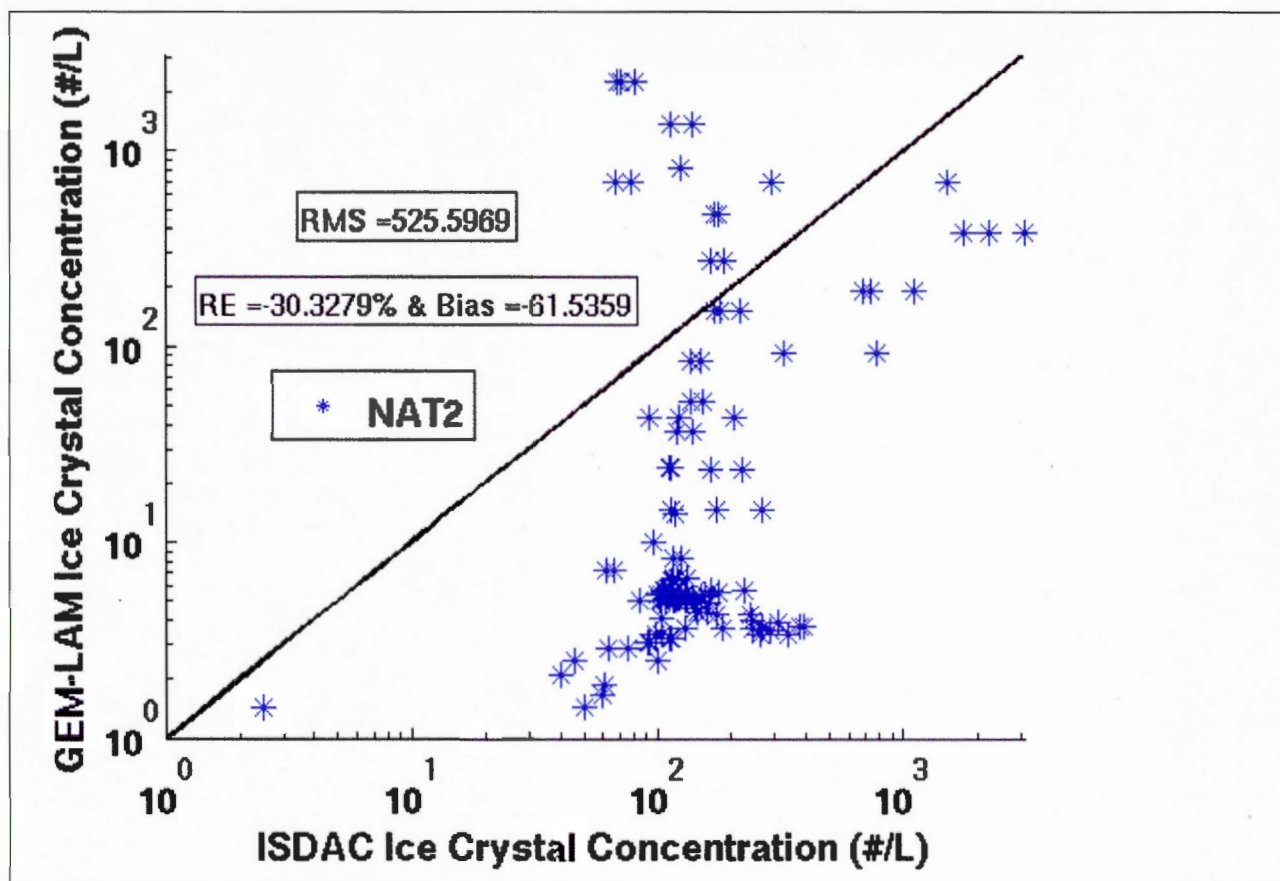
2.18 The observed and simulated co-variabilities between Ni and Si for the flights F12 & F13 for ORI case.



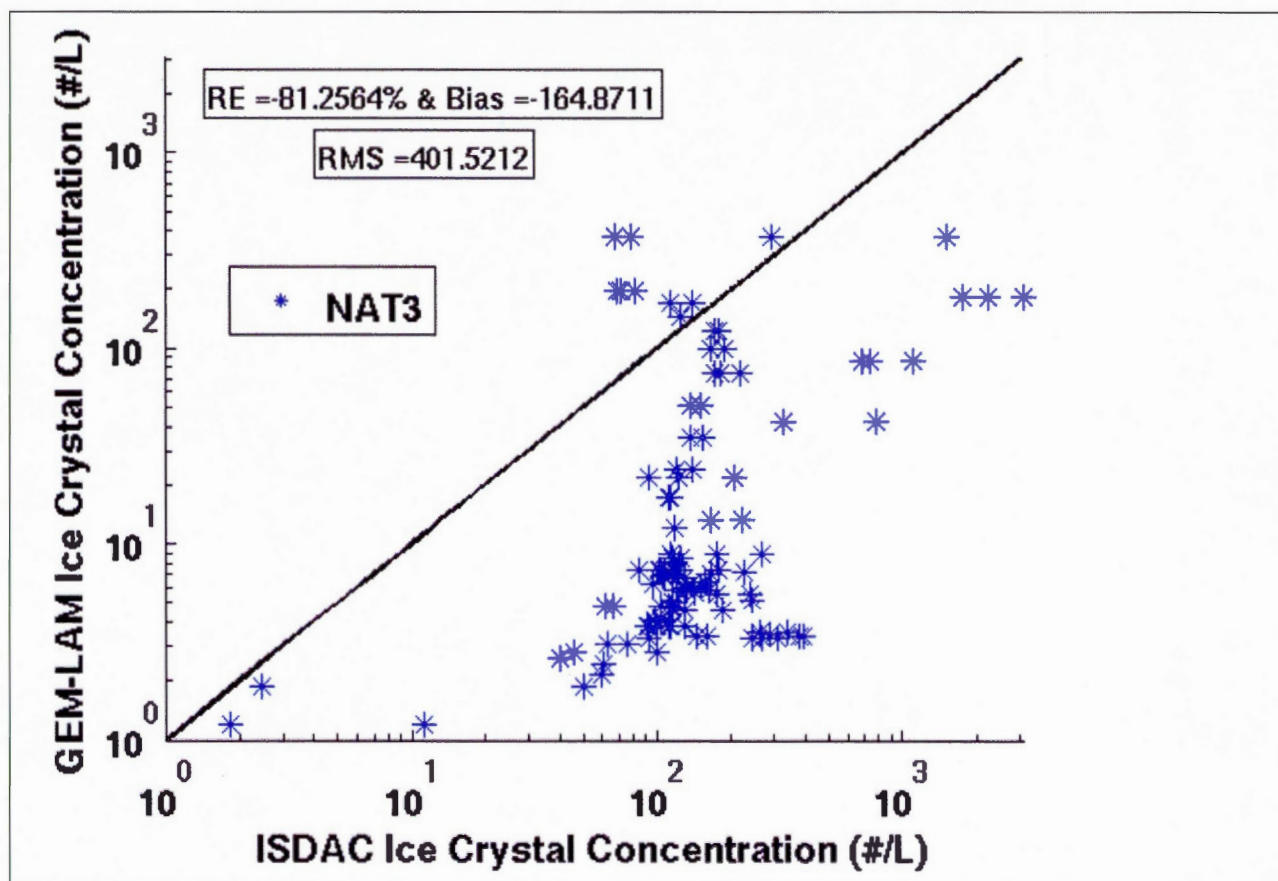
2.19 The observed and simulated co-variabilities between Ni and Si for the flights F12 & F13 for NAC case.



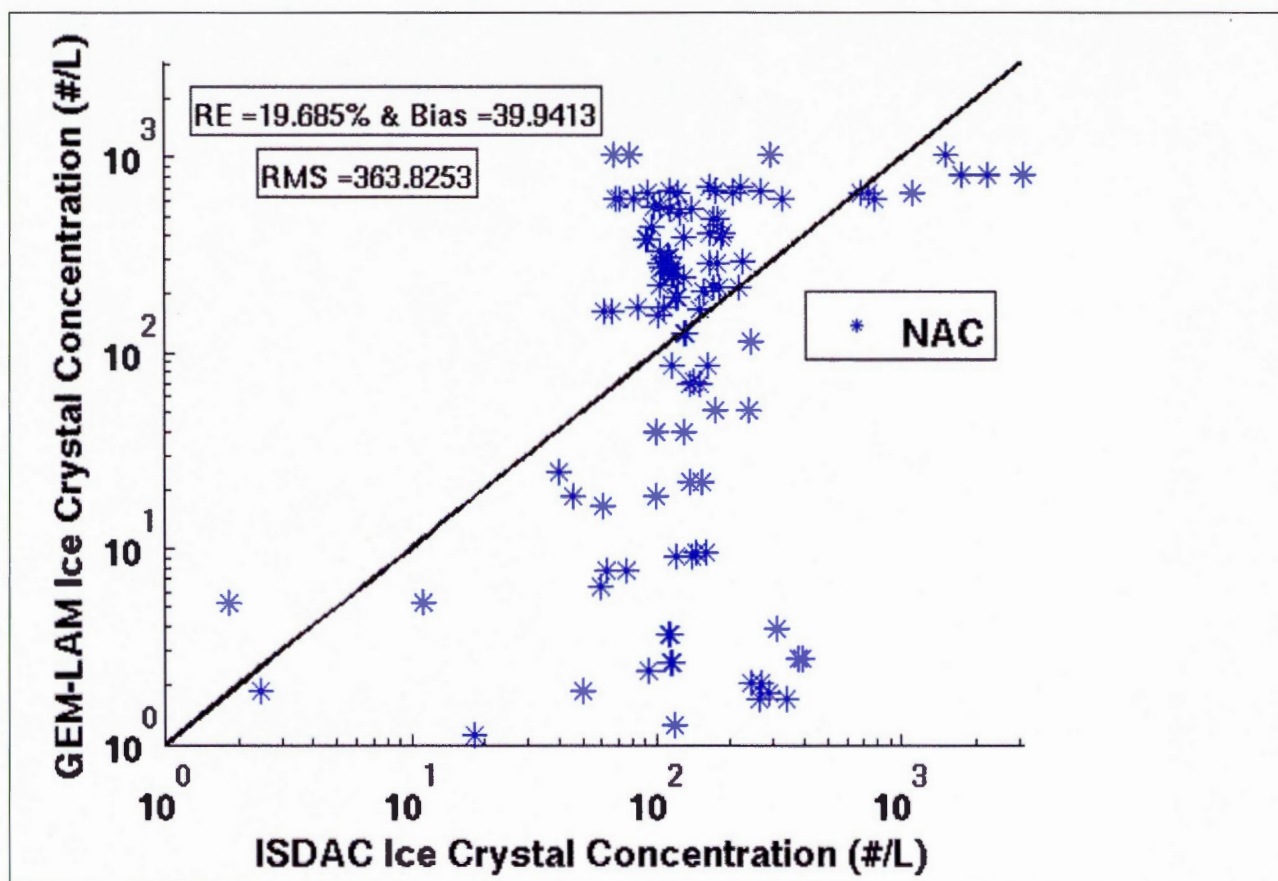
2.20 The co-variability between simulated and observed Ni for flights F12 and F13 for the NAT1 case.



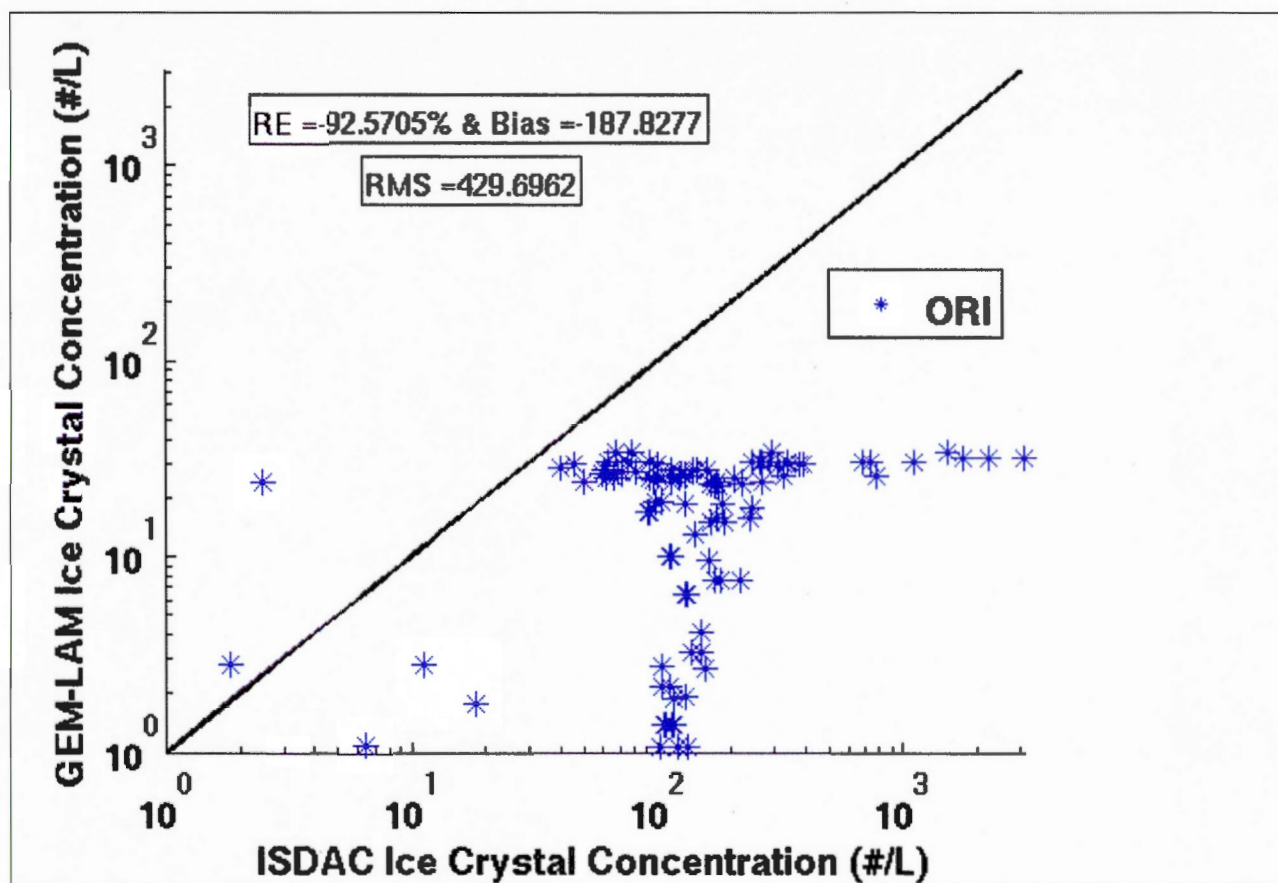
2.21 The co-variability between simulated and observed Ni for flights F12 and F13 for the NAT1 case.



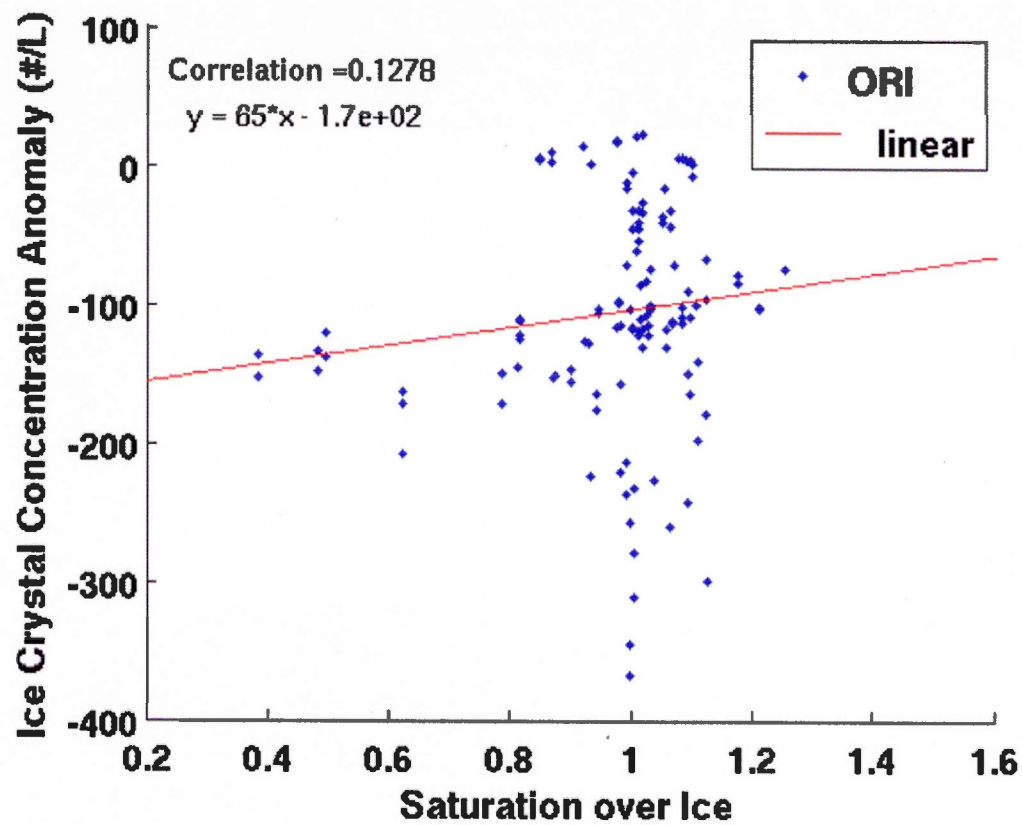
2.22 The co-variability between simulated and observed Ni for flights F12 and F13 for the NAT3 case.



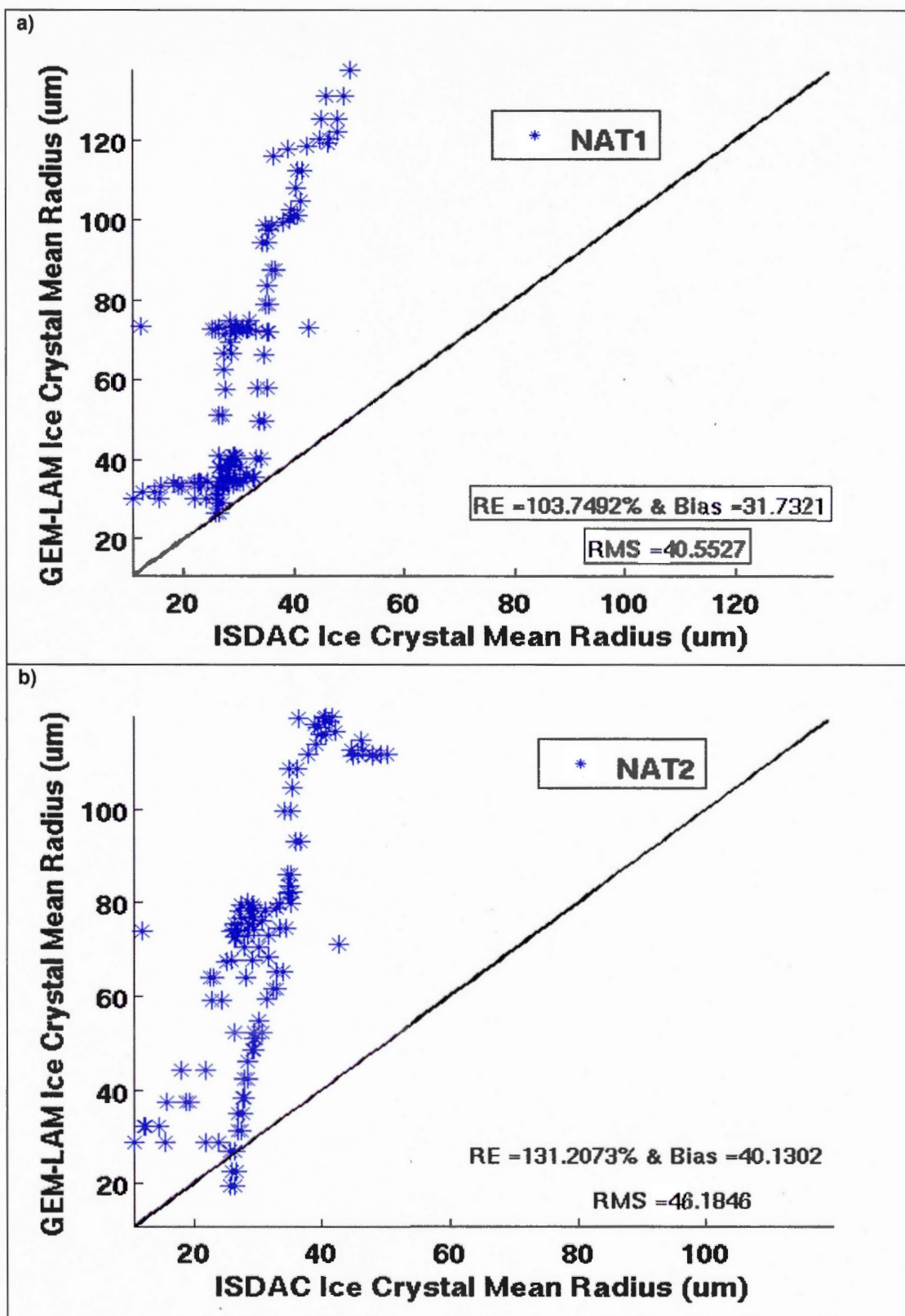
2.23 The co-variability between simulated and observed Ni for flights F12 and F13 for the NAC case.



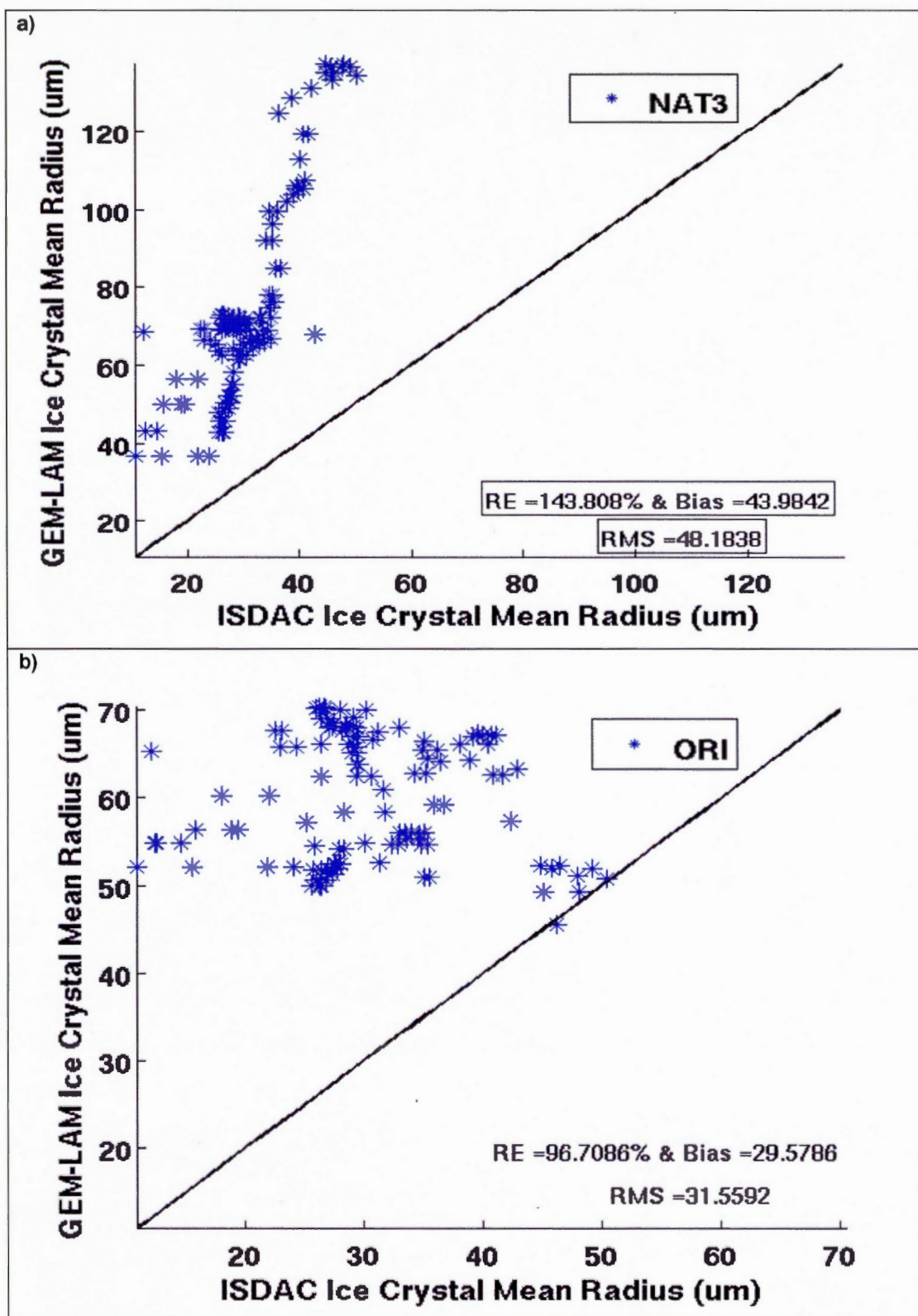
2.24 The co-variability between simulated and observed Ni for flights F12 and F13 for the ORI case.



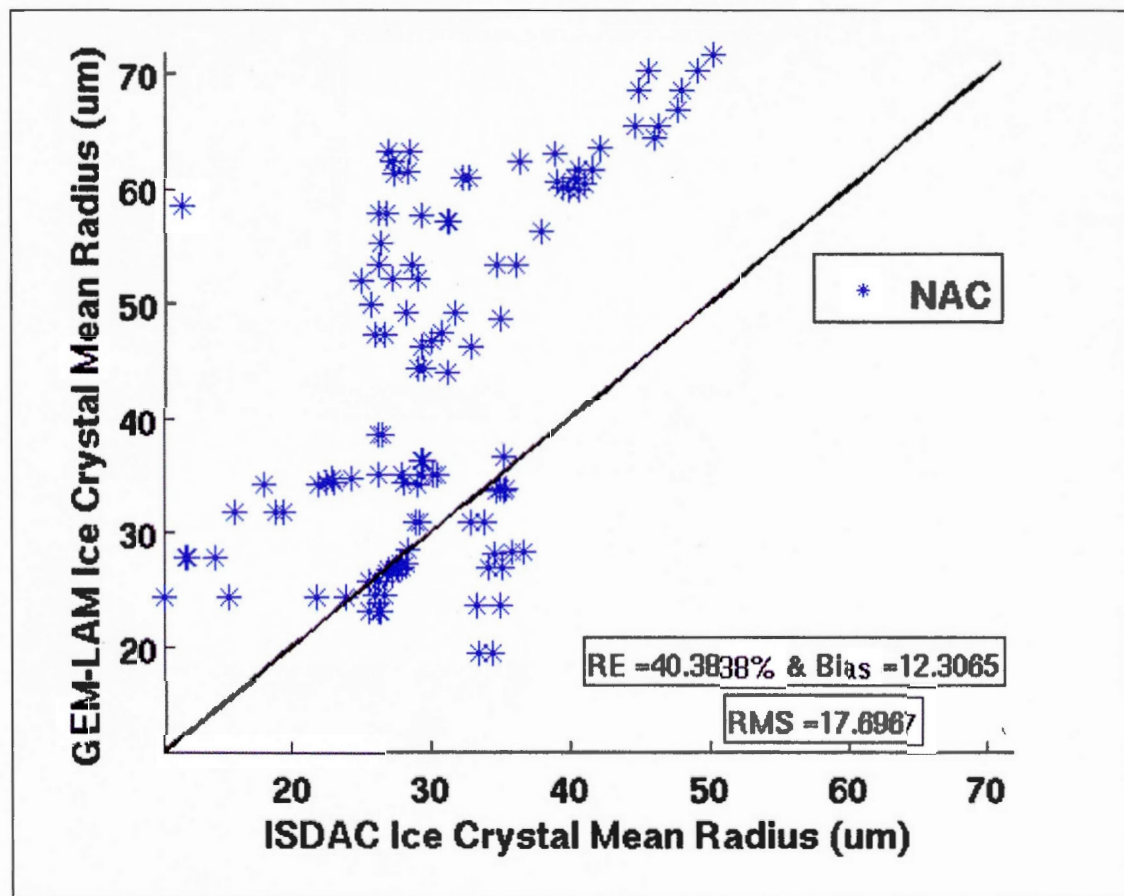
2.25 Covariance between anomalies of ice crystal concentration and saturation over ice in a non-acidic Case.



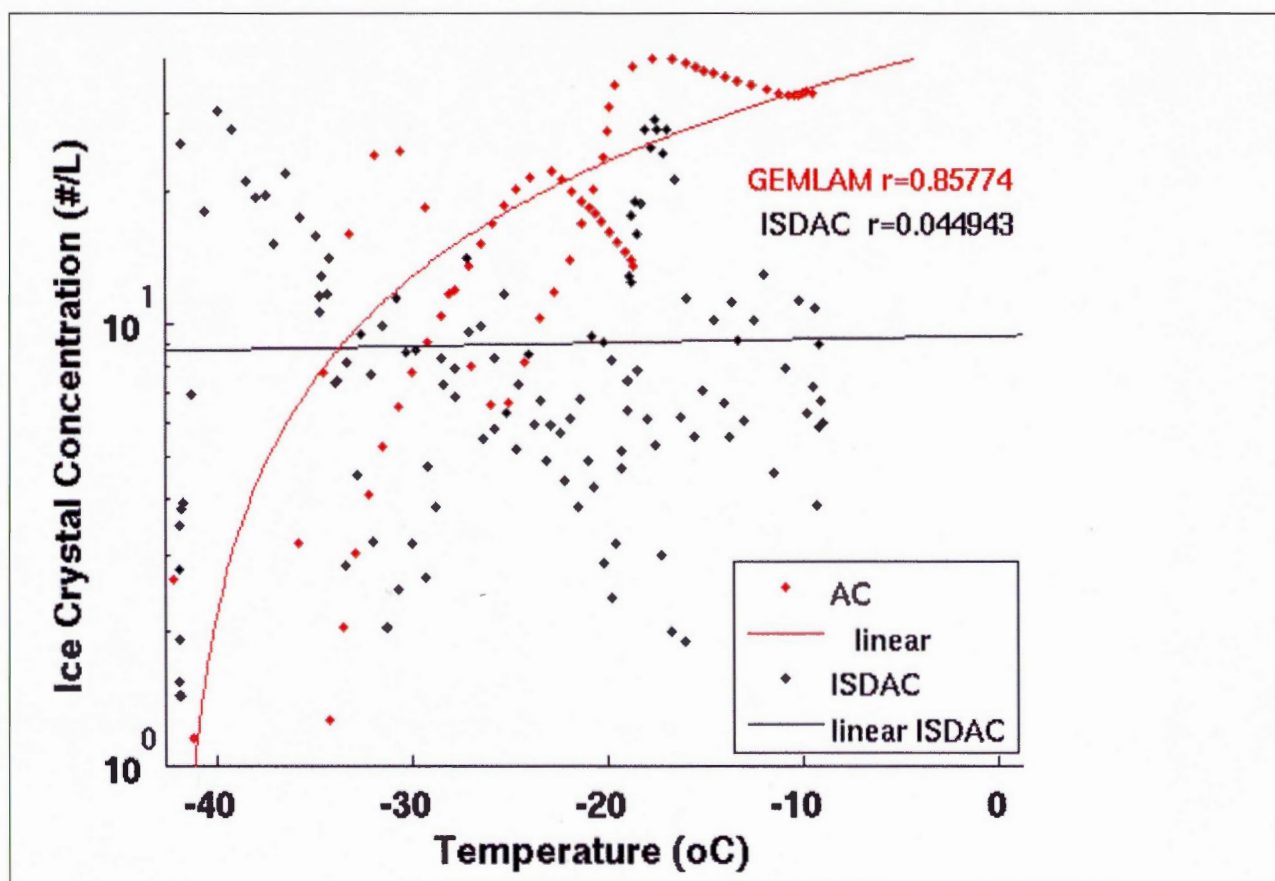
2.26 The co-variability between simulated and observed R_i during flights F12 (a) and F13 (b) for the NAT1 and NAT2 cases respectively.



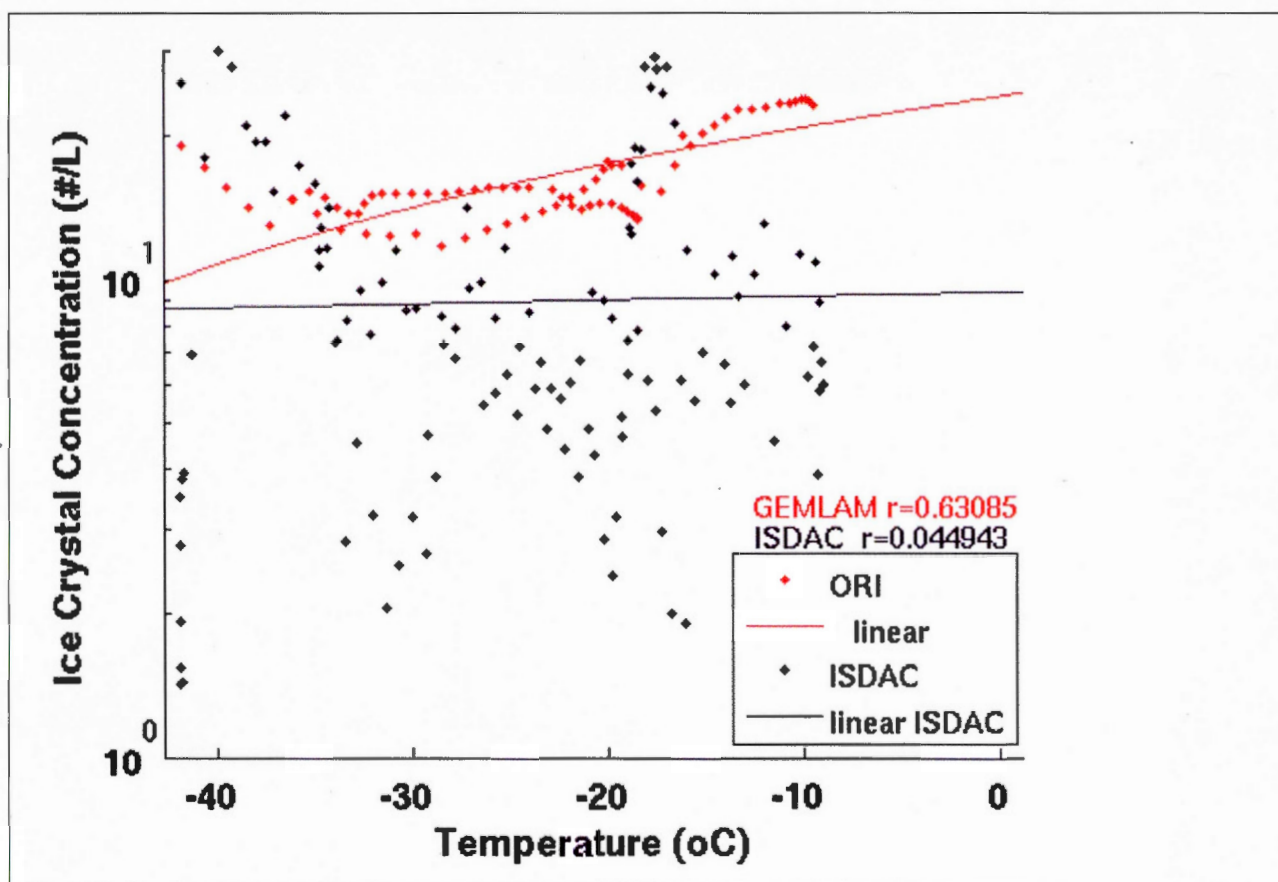
2.27 The co-variability between simulated and observed Ri during flights F12 (a) and F13 (b) for the NAT3 and ORI cases respectively.



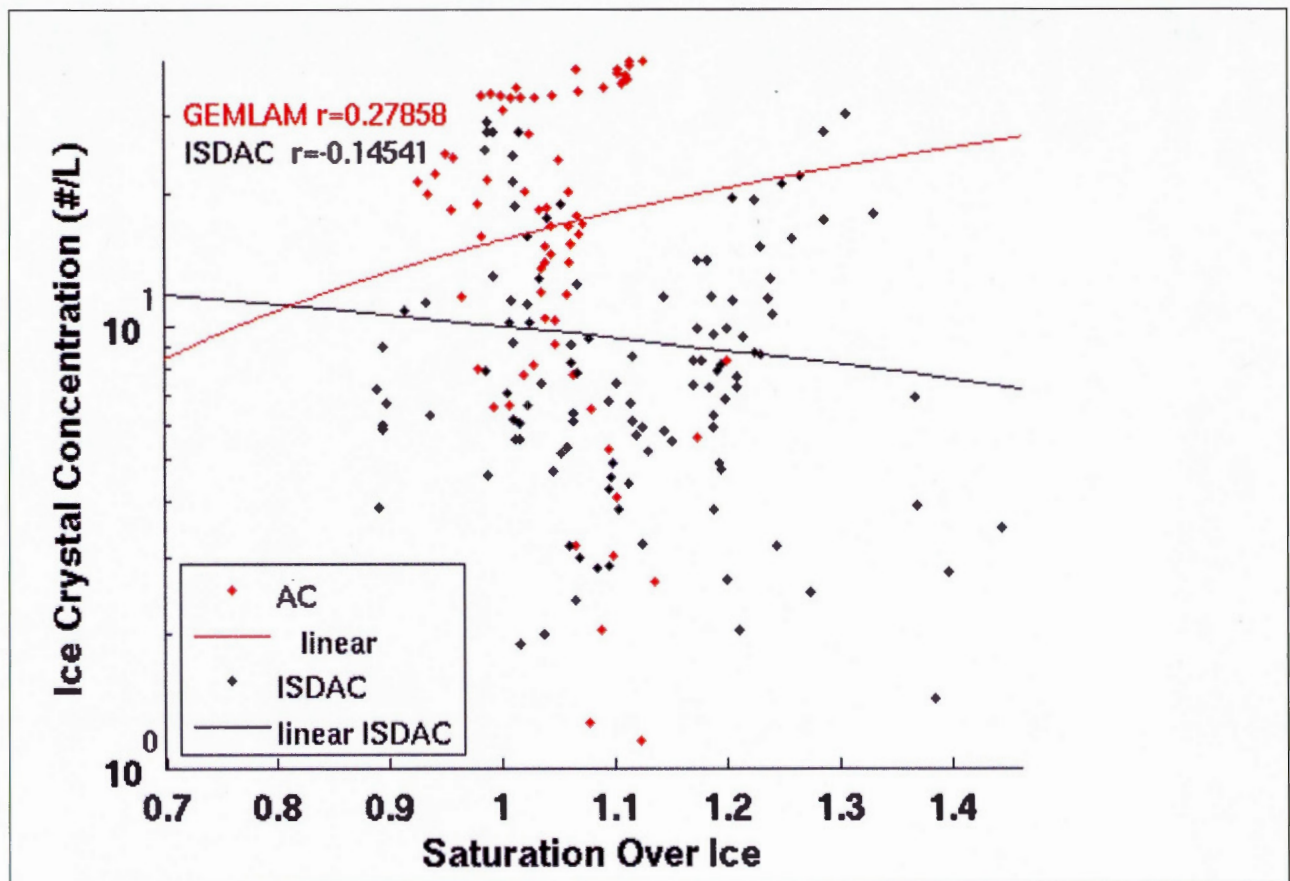
2.28 The co-variability between simulated and observed Ri during flights F12 and F13 for the NAC case.



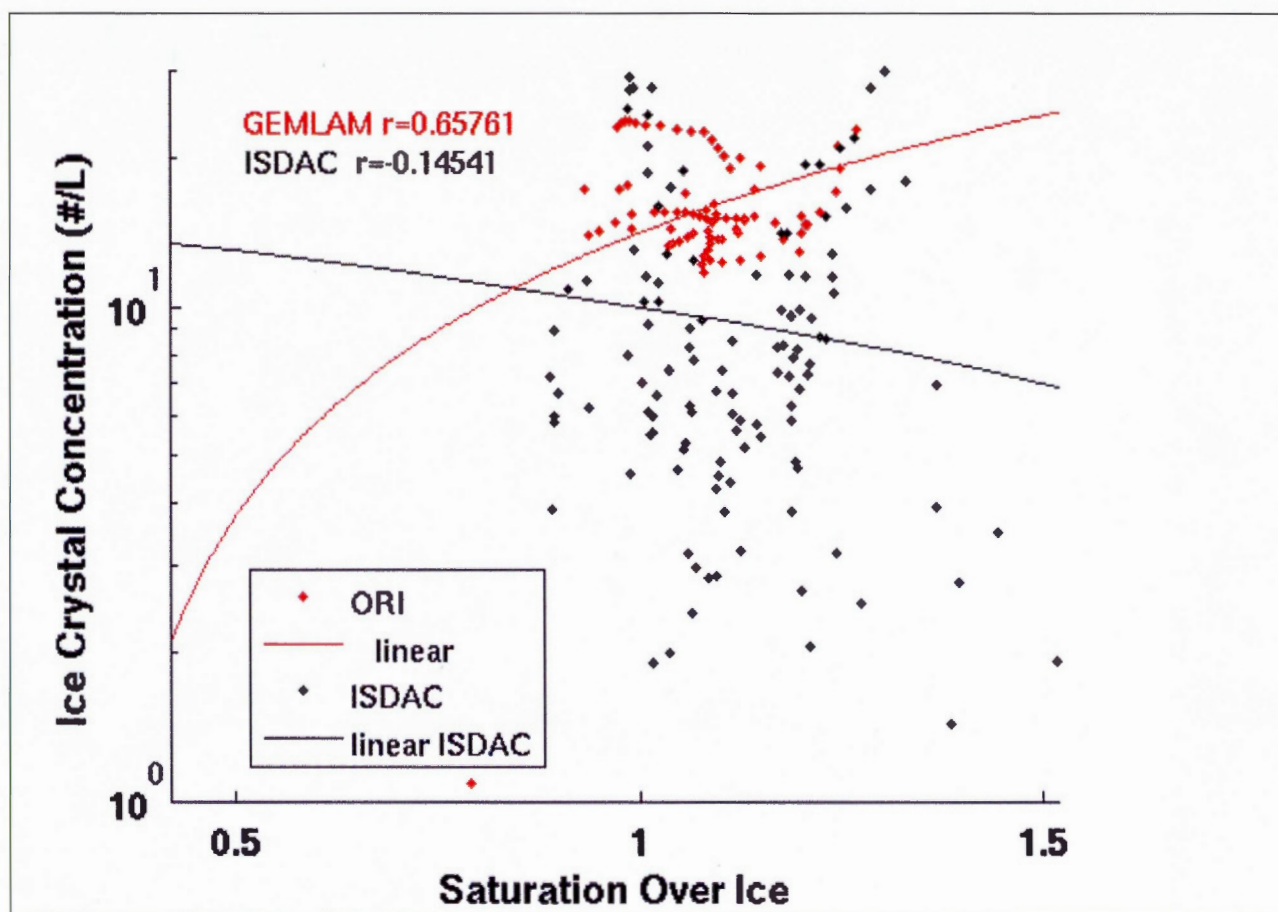
2.29 The observed and simulated co-variability between Ni and TT for flights F21 & F29 for the AC case.



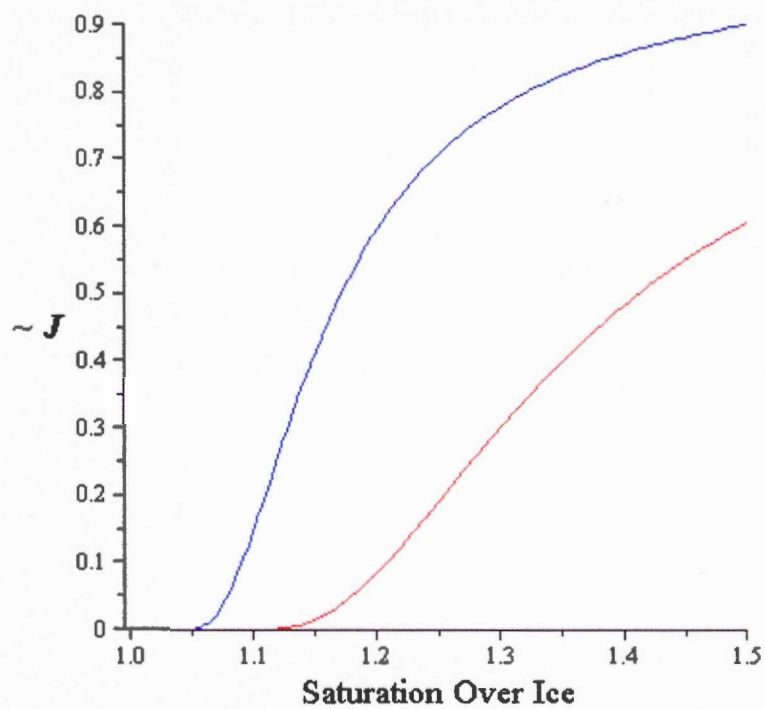
2.30 The observed and simulated co-variability between Ni and TT for flights F21 & F29 for the ORI case.



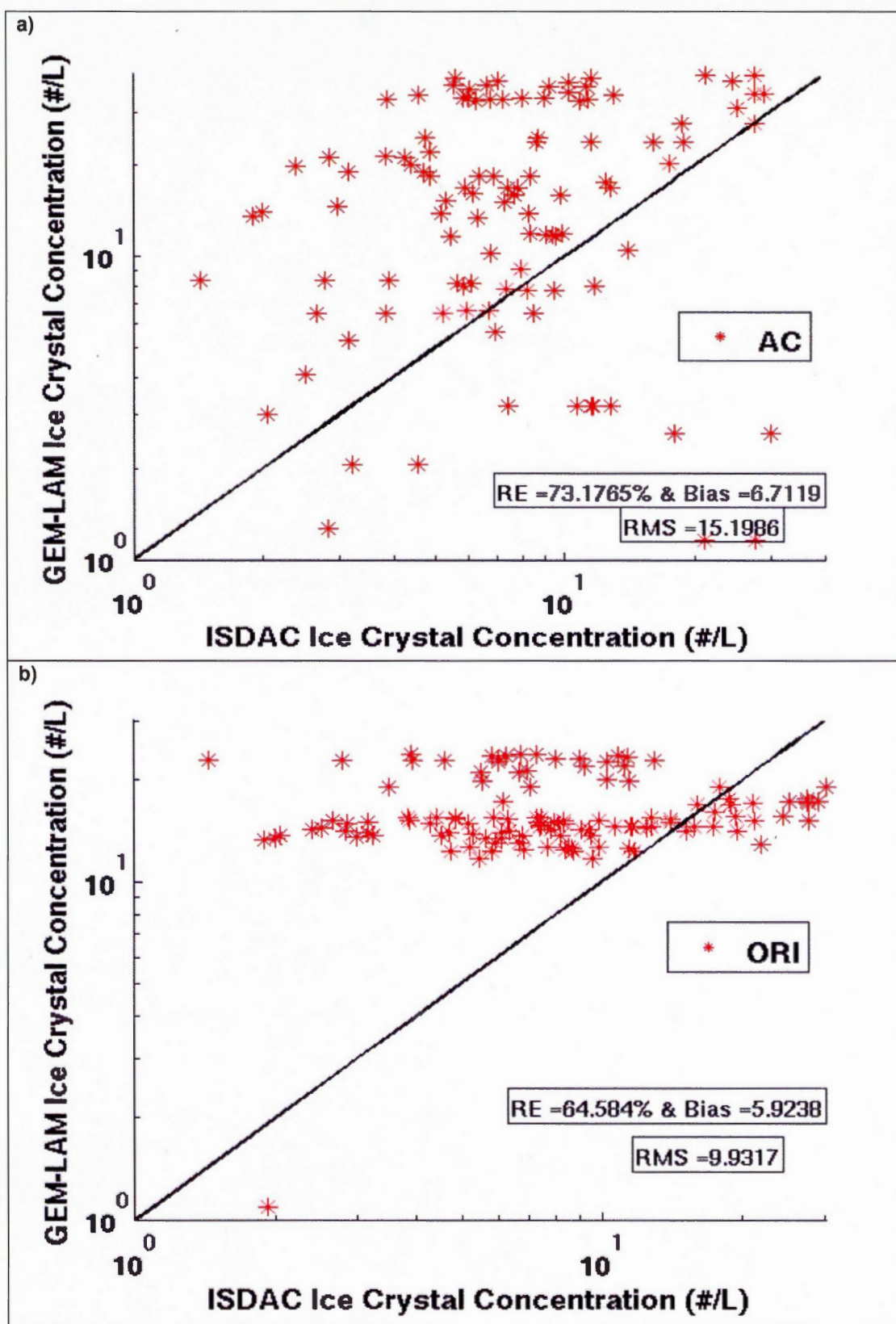
2.31 The observed and simulated co-variability between Ni and Si for flights F21 & F29 for the AC case.



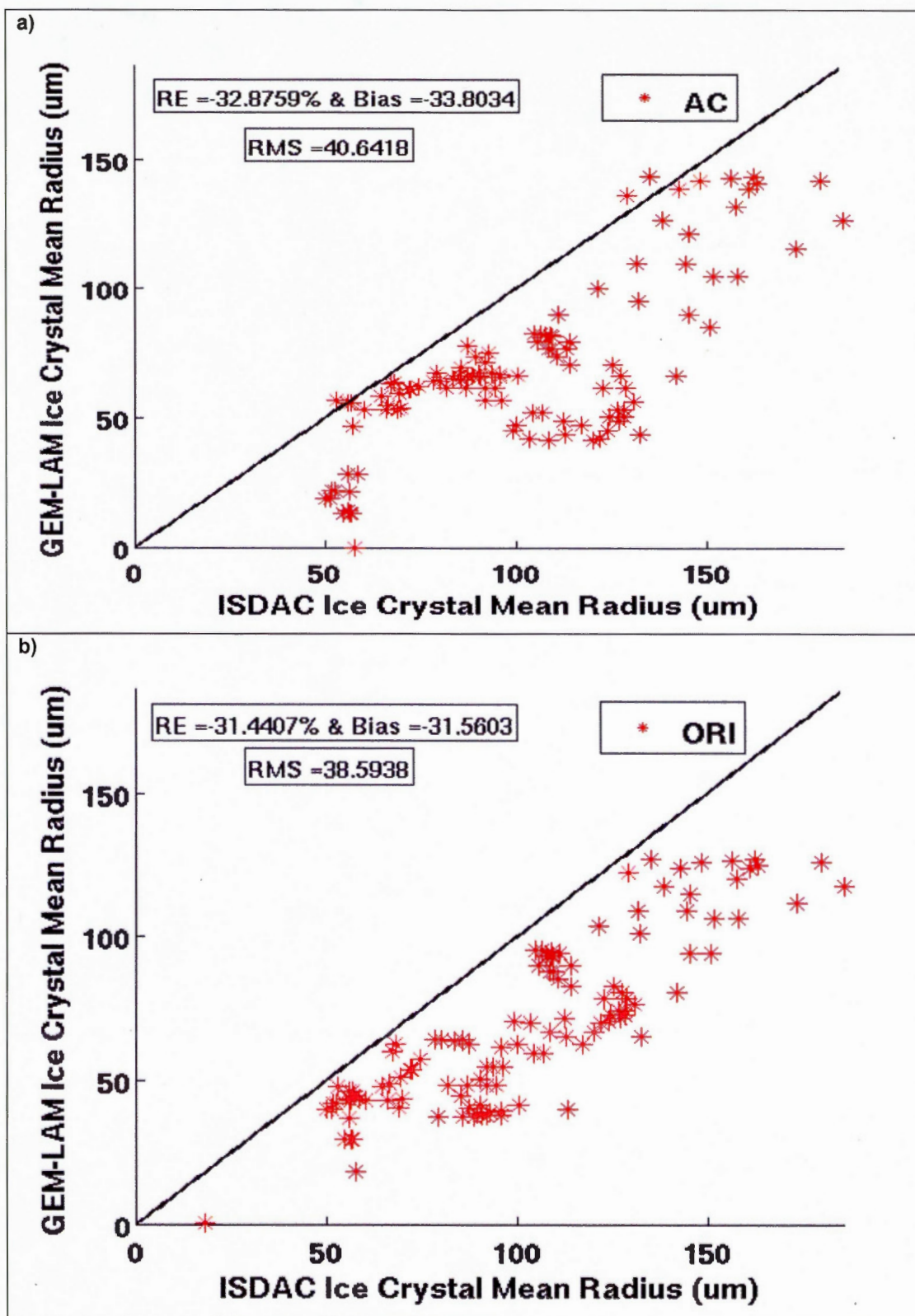
2.32 The observed and simulated co-variability between Ni and Si for flights F21 & F29 for the ORI case.



2.33 The shape of the normalized curve for the exponential part of the nucleation rate equation according to CNT.



2.34 The co-variability between simulated and observed Ni during flights F21 (a) and F29 (b) for the AC and ORI cases respectively.



2.35 The co-variability of simulated and observed Ri during flights F21 (a) and F29 (b) for the AC and ORI case respectively

CHAPITRE III

Conclusion

Jouan et al. (2012) a récemment caractérisé deux types de nuages glacés en Arctique, soit les TIC-1 composés d'une grande concentration de petits cristaux et les TIC-2 composés d'une faible concentration de gros cristaux. Des travaux subséquents de Jouan et al. (2013) suggèrent que les TIC-2 sont associés à des aérosols recouvert hautement acidifiés tandis que les TIC-1 sont plutôt associés à des aérosols plus neutres chimiquement.

Ce projet de recherche a donc été réalisé dans le but de simuler les nuages TIC-1 et TIC-2 observées au cours de la campagne de mesures ISDAC en utilisant des paramétrages appropriés pour la nucléation de la glace. Ces paramétrages sont issus d'études en laboratoire sur des aérosols réputés pour leur efficacité à nucléer les cristaux de glace. En plus du paramétrage de Meyers et al. (1992) (ORI) implémenté dans la version originale du schéma microphysique de Milbrandt and Yau (2005), trois autres paramétrages ont été testés: (1) L'approche stochastique de Eastwood et al. (2008, 2009), pour des particules de kaolinite imbibé (AC) et non imbibé d'acide sulfurique (NAC); (2) l'approche déterministe de Wheeler et Bertram, (2012) pour l'illite (NAT2) et le kaolinite (NAT3); (3) Finalement l'approche déterministe de Niemand et al. (2012) pour les particules de poussière imbibées d'eau pure (NAT1). Alors que les deux premiers sont paramétrés en utilisant des particules de poussière commerciales, le dernier utilise des particules de poussière naturelles recueillies à plusieurs endroits (par exemple du Sahara, Le Caire, etc.). Ces trois paramétrages ont été utilisés parce qu'ils forment un échantillon représentatif des différents paramétrages disponibles actuellement dans la communauté scientifique. Quatre vols spécifiques d'ISDAC ont été ciblés. D'une part les vols F12 et F13 considérés comme les cas non acides, c'est-à-dire que les particules d'aérosols n'ont pas d'enrobage acide. D'autre part les vols F21 et F29 considérés comme des nuages extrêmement acide car les

aérosols sont en grande partie recouverts d'acide sulfurique (Jouan et al., 2012). L'acide sulfurique désactive les noyaux glaçogène en supprimant leur capacité à nucléer les cristaux, ce qui résulte à la formation des TIC-2.

Les différentes simulations menées avec les différents paramétrages ont montré pour les vols (F12 et F13) que NAC arrivait le mieux à simuler les TIC-1. Il présente les meilleurs résultats statistiques et reproduit les mêmes types de cristaux présentés par les observations. Il arrive très bien à reproduire la corrélation entre la concentration en cristaux de glace et la saturation par rapport à la glace. Le faible angle de contact des aérosols non acide conduit à des taux plus élevés de nucléation qui expliquent la forte concentration de cristaux de glace dans le TIC-1. La grande quantité de cristaux de glace est nucléée à la limite de la saturation par rapport à la glace à des valeurs relativement faibles. Cette faible valeur de S_i limite la croissance des cristaux de glace qui conduisent à petit cristaux de glace ($\sim 30 \mu\text{m}$). Il permet au modèle de mieux simuler les petites concentrations de cristaux de glace trouvées dans les couches inférieures des TIC-1. En outre NAT1, NAT2 et NAT3, soit les paramétrages basés sur une approche singulière, présentent des résultats similaires et simulent également relativement bien ces vols mais sous-estiment les concentrations de cristaux dans les basses couches des nuages. Les études statistiques ont montré que les schémas déterministes montraient leurs limites car ils ne sont efficaces qu'à certaines intervalles de température et de saturation (Wheeler and Bertram, (2012), Niemand et al. 2012). Ainsi les résultats obtenus avec NAC et les NAT sont concordants avec l'hypothèse de départ, ces différents paramétrages étant conçus pour simuler des cas non acides. ORI et AC ne reproduisent pas la forte concentration de cristaux de glace observée pendant le vol F12 et F13, même si la saturation par rapport à la glace a été bien reproduite par le modèle.

De ce qui est des vols F21 et F29, les résultats ont montré que ORI et AC sont les seuls à bien reproduire les TIC-2 conformément aux observations qui montrent que les nuages fortement acides formés sont composés d'une faible concentration de grands cristaux de glace (TIC-2) (Jouan et al, 2012). Nous nous attendions à ce que AC se comporte de cette façon puisque ce schéma a été développé pour reproduire la nucléation de la glace sur des noyaux glaçogènes avec enrobage acide. Le grand angle de contact des aérosols associé à l'enrobage d'acide conduit à des taux de nucléation relativement faibles qui expliquent la faible concentration de cristaux de glace dans TIC-2. (e.g. Eastwood et al., 2009, R.C. Sullivan et al., 2010, Demott et al. 2012). Ce processus de nucléation ainsi

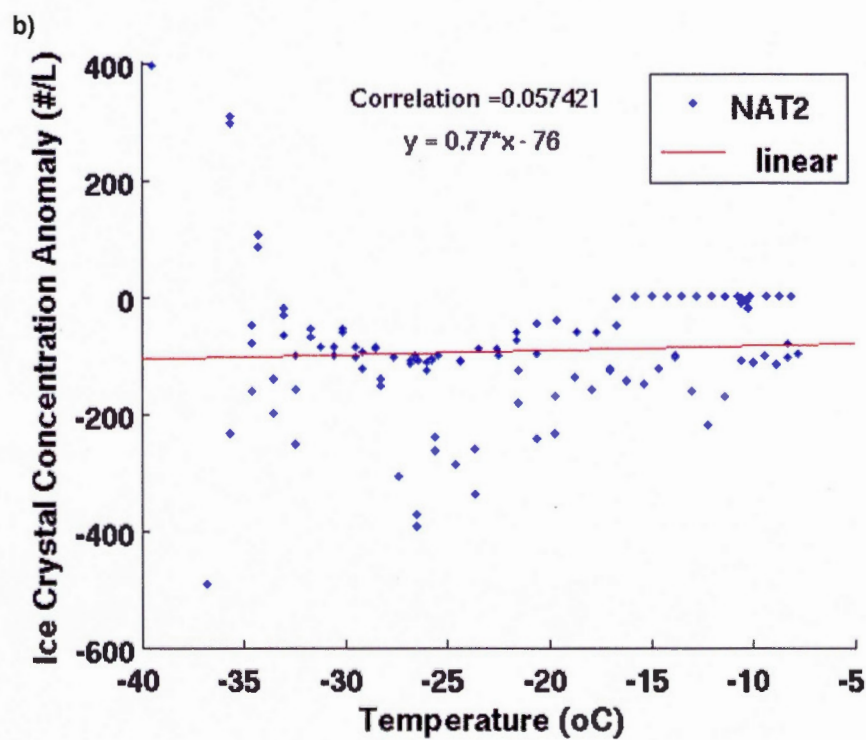
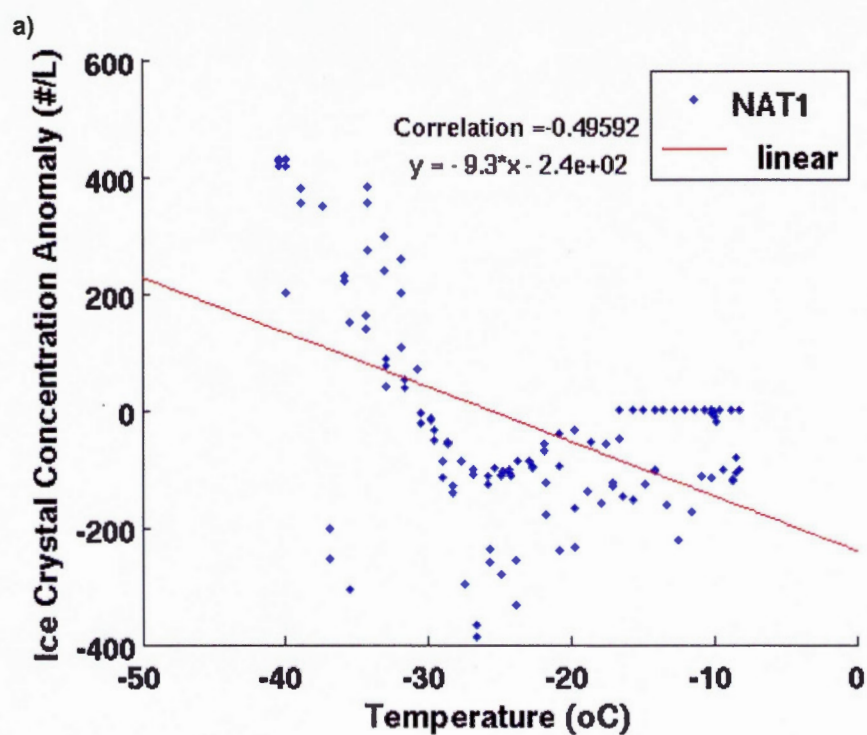
altéré permet d'atteindre des valeurs de sursaturation par rapport à la glace beaucoup plus élevées avant que les cristaux de glace se forment. Cette saturation élevée permet ensuite aux cristaux de croître rapidement par déposition ce qui conduit par conséquent à la formation de gros cristaux de glace ($\sim 102 \mu\text{m}$). Même si ORI n'est pas été conçu spécifiquement pour reproduire les cas acides, sa formulation de nucléation de la glace conduit à une faible concentration de plus gros cristaux qui correspond bien à des TIC-2s pendant les vols F21 et F29.

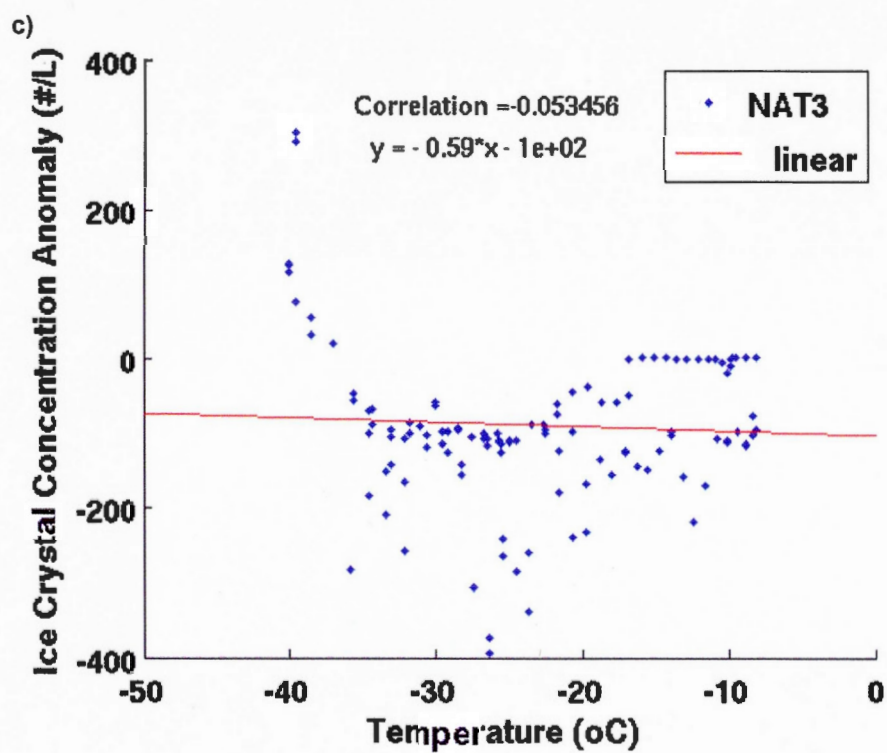
Ainsi le meilleur paramétrage semble être l'approche stochastique de Eastwood et al. (2008, 2009) avec le changement d'angle de contact car il réagit très bien au différent scénario comparé à ORI et aux différents NAT. Non seulement la concentration de cristaux de glace reste dans la plage d'incertitude de valeurs observées, mais la co-variabilité observée entre N_i et S_i d'une part et N_i et TT d'autre part sont raisonnablement bien reproduit. En d'autres termes, les concentrations de cristaux sont bien reproduites pour les bonnes raisons. L'angle de contact donne la possibilité de quantifier l'efficacité des aérosols utilisés lors de la simulation. La version modifiée du schéma microphysique peut simuler la formation des deux TIC-1 et TIC-2 en ajustant en conséquence θ tant dis que la version initiale du schéma n'arrive pas à simuler les nuages composés d'une forte concentration de cristaux de glace (TIC-1). Cela confirme bien que le paramétrage d'Eastwood et al. (2008, 2009) dérivé d'études de laboratoire est une très bonne représentation des aérosols de l'Arctique en hiver.

Dans cette étude, quelques nuages seulement ont été simulés. NAC et AC devront être comparé à d'autres observations de nuage de glace Arctiques pour confirmer ou infirmer ces résultats. Cependant, ces paramétrages semblent prometteurs, car ils peuvent être couplés avec un modèle de chimie et ainsi utiliser la prévision de IN faite par le modèle de chimie pour choisir l'angle de contact approprié (AC ou NAC) afin de faire des simulations à plus grande échelle.

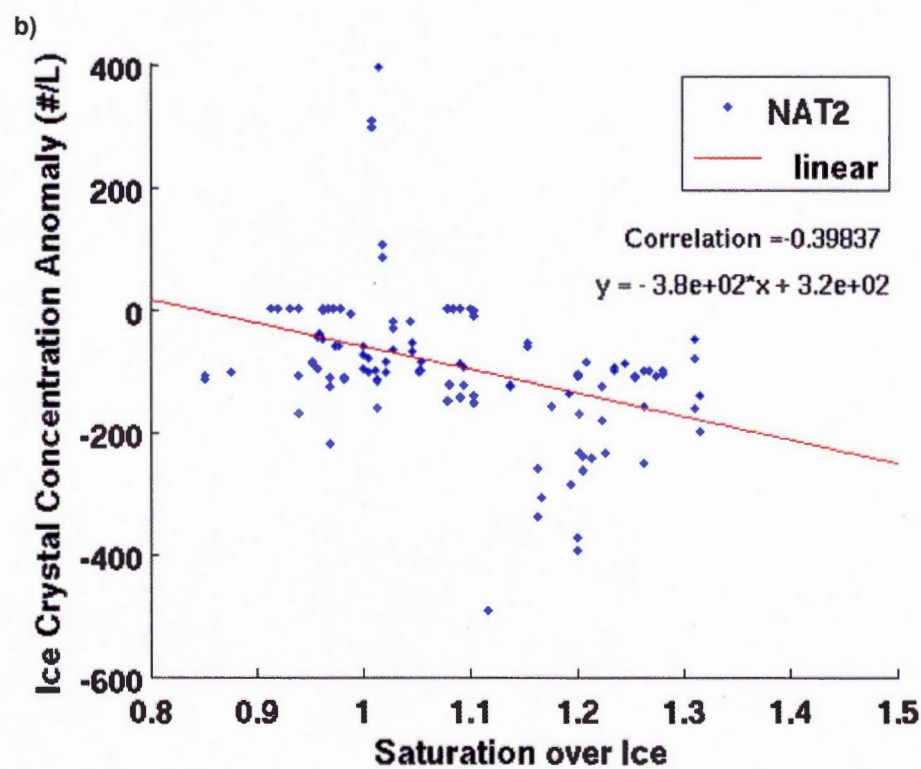
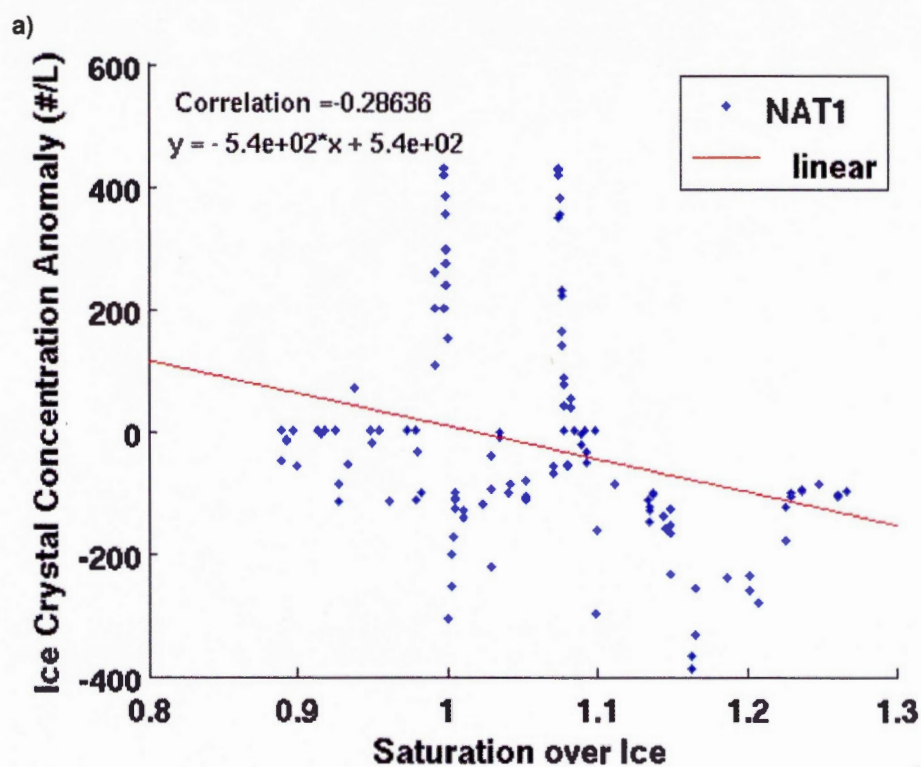
[Cette page a été laissée intentionnellement blanche]

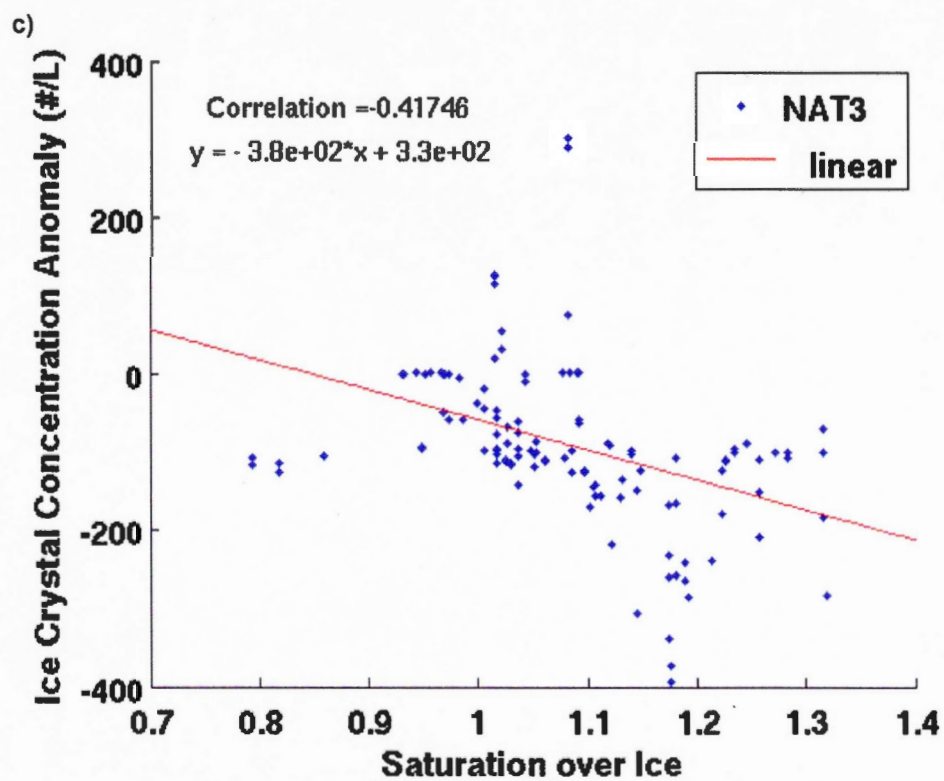
APPENDICES





A. 1 Covariance between anomaly of ice crystal concentration and temperature for NAT1 (a), NAT2 (b) And NAT3(c)





A. 2 Covariance between anomaly of ice crystal concentration and saturation over ice for NAT1 (a), NAT2 (b) And NAT3(c)

[Cette page a été laissée intentionnellement blanche]

RÉFÉRENCES

- Atkinson, D. E., K. Sassen, M. Hayashi, C. F. Cahill, G. Shaw, D. Harrigan and H. Fuelberg. "Arctas-a Ground-Based Observational Campaign and Meteorological Context, Interior Alaska, April 2008." *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 11, no. 6 (2011): 16499-16552.
- Beesley, J. A., C. S. Bretherton, C. Jakob, E. L. Andreas, J. M. Intrieri and T. A. Uttal. "A Comparison of Cloud and Boundary Layer Variables in the Ecmwf Forecast Model with Observations at Surface Heat Budget of the Arctic Ocean (Sheba) Ice Camp." *Journal of Geophysical Research* 105, no. D10 (2000): 12337.
- Broadley, S. L., B. J. Murray, R. J. Herbert, J. D. Atkinson, S. Dobbie, T. L. Malkin, E. Condcliffe and L. Neve. "Immersion Mode Heterogeneous Ice Nucleation by an Illite Rich Powder Representative of Atmospheric Mineral Dust." *Atmospheric Chemistry and Physics* 12, no. 1 (2012): 287-307.
- Burton, S. P., R. A. Ferrare, C. A. Hostetler, J. W. Hair, R. R. Rogers, M. D. Obland, C. F. Butler, A. L. Cook, D. B. Harper and K. D. Froyd. "Aerosol Classification Using Airborne High Spectral Resolution Lidar Measurements – Methodology and Examples." *Atmospheric Measurement Techniques* 5, no. 1 (2012): 73-98.
- Chapman, William L. and John E. Walsh. "A Synthesis of Antarctic Temperatures." *Journal of Climate* 20, no. 16 (2007): 4096-4117.
- Connolly, P. J., O. Möhler, P. R. Field, H. Saathoff, R. Burgess, T. Choularton and M. Gallagher. "Studies of Heterogeneous Freezing by Three Different Desert Dust Samples." *Atmospheric Chemistry and Physics*, (2009).
- Curry, J. A. and J. L. Schramm. "Application of Sheba/Fire to Evaluation of Snow/Ice Albedo Parameterizations." *Journal of Geophysical Research*, (2002).
- Curry, J. A., P. V. Hobbs, M. D. King, D. A. Randall and P. Minnis. "Fire Arctic Clouds Experiment." *American Meteorological society*, (2000).
- DeMott, P. J., A. J. Prenni, X. Liu, S. M. Kreidenweis, M. D. Petters, C. H. Twohy, M. S. Richardson, T. Eidhammer and D. C. Rogers. "Predicting Global Atmospheric Ice Nuclei Distributions and Their Impacts on Climate." *Proc Natl Acad Sci USA* 107, no. 25 (2010): 11217-22.

- Devasthale, Abhay, Olaf Krüger and Hartmut Graßl. "Impact of Ship Emissions on Cloud Properties over Coastal Areas." *Geophysical Research Letters* 33, no. 2 (2006).
- Eastwood, Michael L., Sebastien Cremel, Clemens Gehrke, Eric Girard and Allan K. Bertram. "Ice Nucleation on Mineral Dust Particles: Onset Conditions, Nucleation Rates and Contact Angles." *Journal of Geophysical Research* 113, no. D22 (2008).
- Eastwood, Michael L., Sebastien Cremel, Michael Wheeler, Benjamin J. Murray, Eric Girard and Allan K. Bertram. "Effects of Sulfuric Acid and Ammonium Sulfate Coatings on the Ice Nucleation Properties of Kaolinite Particles." *Geophysical Research Letters* 36, no. 2 (2009).
- Girard, Eric, Guillaume Dueymes, Ping Du and Allan K. Bertram. "Assessment of the Effects of Acid-Coated Ice Nuclei on the Arctic Cloud Microstructure, Atmospheric Dehydration, Radiation and Temperature During Winter." *International Journal of Climatology* 33, no. 3 (2013): 599-614.
- Grenier, Patrick and Jean-Pierre Blanchet. "Investigation of the Sulphate-Induced Freezing Inhibition Effect from Cloudsat and Calipso Measurements." *Journal of Geophysical Research* 115, no. D22 (2010).
- Grenier, Patrick, Jean-Pierre Blanchet and Rodrigo Muñoz-Alpizar. "Study of Polar Thin Ice Clouds and Aerosols Seen by Cloudsat and Calipso During Midwinter 2007." *Journal of Geophysical Research* 114, no. D9 (2009).
- Hassol S.J. Cambridge University Press; New York: 2004. Impacts of a warming Arctic, Arctic climate impact assessment. See <http://www.acia.uaF.edu>.
- Hansen, J., R. Ruedy, M. Sato and K. Lo. "Global Surface Temperature Change." *Reviews of Geophysics* 48, no. 4 (2010).
- Hoose, C. and O. Möhler. "Heterogeneous Ice Nucleation on Atmospheric Aerosols: A Review of Results from Laboratory Experiments." *Atmospheric Chemistry and Physics* 12, no. 20 (2012): 9817-9854.
- Intrieri, J.M and M.D. Shupe. "Characterization and Radiative Effects of Diamond Dust of the Western Arctic Ocean Region." *Journal of Climate*, (2004).
- J, Coté, S. Gravel, A. Méhot, A. Patoine, M. Roch and A. Staniforth. "The Operational Cmc-Mrb Global Environmental Multiscale (Gem) Model.
- Part I: Design Considerations and Formulation." *American Meteorological society*, (1998).

J, Coté, S. Gravel, A. Méhot, A. Patoine, M. Roch and A. Staniforth. "The Operational Cmc-Mrb Global Environmental Multiscale (Gem) Model.

Part II: Results." *American Meteorological society*, (1998).

Jouan, C., J. Pelon, E. Girard, G. Ancellet, J. P. Blanchet and J. Delanoë. "On the Relationship between Arctic Ice Clouds and Polluted Air Masses over the North Slope of Alaska in April 2008." *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 13, no. 2 (2013): 4331-4389.

Jouan, Caroline, Eric Girard, Jacques Pelon, Ismail Gultepe, Julien Delanoë and Jean-Pierre Blanchet. "Characterization of Arctic Ice Cloud Properties Observed During Isdac." *Journal of Geophysical Research* 117, no. D23 (2012).

Klein, Stephen A., Renata B. McCoy, Hugh Morrison, Andrew S. Ackerman, Alexander Avramov, Gijs de Boer, Mingxuan Chen, Jason N. S. Cole, Anthony D. Del Genio, Michael Falk, Michael J. Foster, Ann Fridlind, Jean-Christophe Golaz, Tempei Hashino, Jerry Y. Harrington, Corinna Hoose, Marat F. Khairoutdinov, Vincent E. Larson, Xiaohong Liu, Yali Luo, Greg M. McFarquhar, Surabi Menon, Roel A. J. Neggers, Sungsu Park, Michael R. Poellot, Jerome M. Schmidt, Igor Sednev, Ben J. Shipway, Matthew D. Shupe, Douglas A. Spangenberg, Yogesh C. Sud, David D. Turner, Dana E. Veron, Knut von Salzen, Gregory K. Walker, Zhien Wang, Audrey B. Wolf, Shaocheng Xie, Kuan-Man Xu, Fanglin Yang and Gong Zhang. "Intercomparison of Model Simulations of Mixed-Phase Clouds Observed During the Arm Mixed-Phase Arctic Cloud Experiment. I: Single-Layer Cloud." *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 135, no. 641 (2009): 979-1002.

Korolev, A.V., and I.P. Mazin "Supersaturation of Water Vapor in Clouds." *Atmospheric Chemistry and Physics*, (2003).

Lampert, A., A. Ehrlich, A. Dörnbrack, O. Jourdan, J.-F. Gayet, G. Mioche, V. Shcherbakov, C. Ritter1 and M. Wendisch. "Microphysical and Radiative Characterization of a Subvisible Midlevel Arctic Ice Cloud by Airborne Observations – a Case Study." *Atmospheric Chemistry and Physics* 6, (2009): 2647-2661.

McFarquhar, Greg M., Steven Ghan, Johannes Verlinde, Alexei Korolev, J. Walter Strapp, Beat Schmid, Jason M. Tomlinson, Mengistu Wolde, Sarah D. Brooks, Dan Cziczko, Manvendra K. Dubey, Jiwen Fan, Connor Flynn, Ismail Gultepe, John Hubbe, Mary K. Gilles, Alexander Laskin, Paul Lawson, W. Richard Leaitch, Peter Liu, Xiaohong Liu, Dan Lubin, Claudio Mazzoleni, Ann-Marie Macdonald, Ryan C. Moffet, Hugh Morrison, Mikhail Ovchinnikov, Matthew D. Shupe, David D. Turner, Shaocheng Xie, Alla Zelenyuk, Kenny Bae, Matt Freer and Andrew Glen. "Indirect and Semi-Direct Aerosol Campaign." *Bulletin of the American Meteorological Society* 92, no. 2 (2011): 183-201.

Morrison, Hugh, Gijs de Boer, Graham Feingold, Jerry Harrington, Matthew D. Shupe and Kara Sulia. "Resilience of Persistent Arctic Mixed-Phase Clouds." *Nature Geoscience* 5, no. 1 (2011): 11-17.

Murray, B. J., S. L. Broadley, T. W. Wilson, J. D. Atkinson and R. H. Wills. "Heterogeneous Freezing of Water Droplets Containing Kaolinite Particles." *Atmospheric Chemistry and Physics* 11, no. 9 (2011): 4191-4207.

- Murray, B. J., D. O'Sullivan, J. D. Atkinson and M. E. Webb. "Ice Nucleation by Particles Immersed in Supercooled Cloud Droplets." *Chem Soc Rev* 41, no. 19 (2012): 6519-54.
- Niemand, Monika, Ottmar Möhler, Bernhard Vogel, Heike Vogel, Corinna Hoose, Paul Connolly, Holger Klein, Heinz Bingemer, Paul DeMott, Julian Skrotzki and Thomas Leisner. "A Particle-Surface-Area-Based Parameterization of Immersion Freezing on Desert Dust Particles." *Journal of the Atmospheric Sciences* 69, no. 10 (2012): 3077-3092.
- Phillips, Vaughan T. J., Paul J. DeMott and Constantin Andronache. "An Empirical Parameterization of Heterogeneous Ice Nucleation for Multiple Chemical Species of Aerosol." *Journal of the Atmospheric Sciences* 65, no. 9 (2008): 2757-2783.
- Pruppacher, H. R. and Klett, J. D. "Microphysics of clouds and precipitation". Kluwer Academic Publishers, London (1997).
- Serreze, Mark C. and Jennifer A. Francis. "The Arctic on the Fast Track of Change." *Royal Meteorological Society* (2006).
- Shupe, Matthew D. "Clouds at Arctic Atmospheric Observatories. Part II: Thermodynamic Phase Characteristics." *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 50, no. 3 (2011): 645-661.
- Shupe, Matthew D., Von P. Walden, Edwin Eloranta, Taneil Uttal, James R. Campbell, Sandra M. Starkweather and Masataka Shiobara. "Clouds at Arctic Atmospheric Observatories. Part I: Occurrence and Macrophysical Properties." *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 50, no. 3 (2011): 626-644.
- Sullivan, R. C., M. D. Petters, P. J. DeMott, S. M. Kreidenweis, H. Wex, D. Niedermeier, S. Hartmann, T. Clauss, F. Stratmann, P. Reitz, J. Schneider and B. Sierau. "Irreversible Loss of Ice Nucleation Active Sites in Mineral Dust Particles Caused by Sulphuric Acid Condensation." *Atmospheric Chemistry and Physics* 10, no. 23 (2010): 11471-11487.
- Tobo, Yutaka, Paul J. DeMott, Michael Raddatz, Dennis Niedermeier, Susan Hartmann, Sonia M. Kreidenweis, Frank Stratmann and Heike Wex. "Impacts of Chemical Reactivity on Ice Nucleation of Kaolinite Particles: A Case Study of Levoglucosan and Sulfuric Acid." *Geophysical Research Letters* 39, no. 19 (2012): n/a-n/a.
- Twomey, S. "The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds." *Atmospheric Chemistry and Physics*, (1977).
- Warneke, C., R. Bahreini, J. Brioude, C. A. Brock, J. A. de Gouw, D. W. Fahey, K. D. Froyd, J. S. Holloway, A. Middlebrook, L. Miller, S. Montzka, D. M. Murphy, J. Peischl, T. B. Ryerson, J. P. Schwarz, J. R. Spackman and P. Veres. "Biomass Burning in Siberia and Kazakhstan as an Important Source for Haze over the Alaskan Arctic in April 2008." *Geophysical Research Letters* 36, no. 2 (2009): n/a-n/a.

Welti, A., F. Lüönd, Z. A. Kanji, O. Stetzer and U. Lohmann. "Time Dependence of Immersion Freezing: An Experimental Study on Size Selected Kaolinite Particles." *Atmospheric Chemistry and Physics* 12, no. 20 (2012): 9893-9907.

Welti, A., F. Luond, O. Stetzer and U. Lohmann. "Influence of Particle Size on the Ice Nucleating Ability of

Mineral Dusts." *Atmospheric Chemistry and Physics*, (2009).

Wheeler, M. J. and A. K. Bertram. "Deposition Nucleation on Mineral Dust Particles: A Case against Classical Nucleation Theory with the Assumption of a Single Contact Angle." *Atmospheric Chemistry and Physics* 12, no. 2 (2012): 1189-1201.